

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

PCT

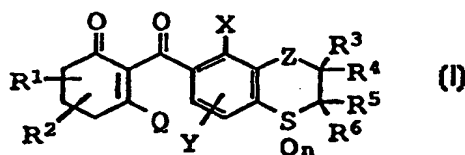
世界知的所有権機関  
国際事務局  
特許協力条約に基づいて公開された国際出願



(51) 国際特許分類6 C07D 335/06, 409/12, A01N 43/18	A1	(11) 国際公開番号 WO98/29406  (43) 国際公開日 1998年7月9日(09.07.98)
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP97/04785</p> <p>(22) 国際出願日 1997年12月24日(24.12.97)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平8/349866 1996年12月27日(27.12.96) JP</p> <p>(71) 出願人 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)(JP/JP) 〒100 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者 鎌野秀樹(KAMANO, Hideki) 那須野一郎(NASUNO, Ichiro) 山本弘志(YAMAMOTO, Hiroshi) 小池和好(KOIKE, Kazuyoshi) 〒299-02 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba, (JP)</p> <p>(74) 代理人 弁理士 中村静男(NAKAMURA, Shizuo) 〒110 東京都台東区台東2丁目24番10号 エスティビル3階 Tokyo, (JP)</p>	<p>(81) 指定国 AL, AM, AU, BA, BB, BG, BR, CA, CN, CU, CZ, EE, GE, HU, IL, IS, JP, KR, LC, LK, LR, LT, LV, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, SG, SI, SK, SL, TR, TT, UA, UZ, VN, YU, ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p> <p><i>benzoyl cyclohexanediones</i></p> <p><i>= US 5,801,121</i></p>	

(54) Title: CYCLOHEXANEDIONE DERIVATIVES AND HERBICIDES PREPARED THEREFROM

(54) 発明の名称 シクロヘキサジオン誘導体およびそれを用いた除草剤

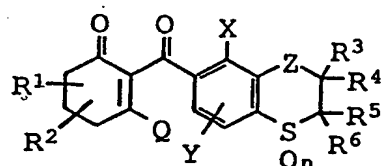


(57) Abstract

Cyclohexanedione derivatives represented by general formula (I), salts thereof, and herbicides containing the same as the active ingredients. These chemicals do not injure upland field crops such as corn in both soil treatment and foliage treatment and can selectively control a wide variety of upland weeds in a low dose.

(57) 要約

一般式 (I)



(1)

で表されるシクロヘキサノン誘導体またはその塩、およびこれらを有効成分として含有する除草剤である。

本発明の上記シクロヘキサノン誘導体やその塩は、土壌処理および茎葉処理のいずれにおいてもトウモロコシなどの畑栽培作物に対して薬害を及ぼすことなく、広範な畑地雑草を低薬量で選択的に防除することができる。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード (参考情報)

AL	アルバニア	FI	フィンランド	LT	リトアニア	SN	セネガル
AM	アルメニア	FR	フランス	LU	ルクセンブルグ	SZ	スワジランド
AT	オーストリア	GB	英国	LV	ラトヴィア	TD	チャド
AU	オーストラリア	GE	ジョージア	MC	モナコ	TG	トーゴ
AZ	アゼルバイジャン	GM	ギニア	MD	モルドバ	TJ	タジキスタン
BB	バハマ	GH	ガーナ	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BE	ベルギー	GN	ギニア	MK	マケドニア共和国	TT	トリニダード・トバゴ
BF	ブルキナファソ	GR	ギリシャ	ML	マリ	UA	ウクライナ
BG	ブルガリア	GU	グアテマラ	MN	モンゴル	UG	ウガンダ
BR	ブラジル	DE	ドイツ	MR	モーリタニア	US	米国
BY	ベラルーシ	IE	アイルランド	MW	モザンビーク	UZ	ウズベキスタン
CA	カナダ	IL	イスラエル	MX	メキシコ	VN	ベトナム
CC	中央アフリカ共和国	IT	イタリア	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラビア
CG	コンゴ共和国	JP	日本	NL	オランダ	ZW	ジンバブエ
CH	スイス	KE	ケニア	NO	ノルウェー		
CI	コートジボワール	KR	韓国	NZ	ニュージーランド		
CM	カメルーン	KZ	カザフスタン	PL	ポーランド		
CN	中国	KG	キルギス	PT	ポルトガル		
CO	コロンビア	KR	韓国	RO	ルーマニア		
CY	キプロス	KG	キルギス	RU	ロシア		
CZ	チェコ	KG	キルギス	SD	スーダン		
DE	ドイツ	KG	キルギス	SE	スウェーデン		
DK	デンマーク	KG	キルギス	SI	スロベニア		
EE	エストニア	KG	キルギス	SK	スロバキア		
		KG	キルギス	SI	スロベニア		

## 明 細 書

### シクロヘキサンジオン誘導体およびそれを用いた除草剤

#### 技術分野

本発明は新規なシクロヘキサンジオン誘導体およびそれを用いた除草剤に関し、さらに詳しくは、トウモロコシなどの作物に薬害がなく、広範な畑地雑草を低薬量で防除しうるシクロヘキサンジオン誘導体、およびこのものを含有する除草剤に関するものである。

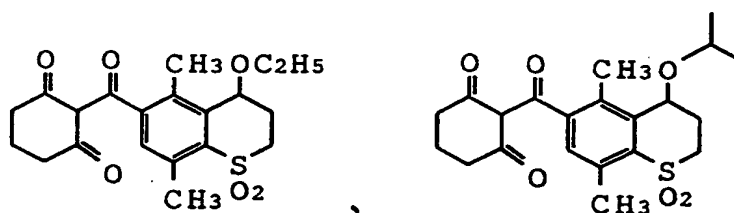
#### 背景技術

雑草防除作業の省力化や農園芸作物の生産性向上にとって、除草剤は極めて重要な薬剤であり、そのため長年にわたって除草剤の研究開発が積極的に行われ、現在多種多様な薬剤が実用化されている。しかし、今日においてもさらに卓越した除草特性を有する新規薬剤、特に栽培作物に薬害を及ぼすことがなく、対象雑草のみを選択的に、かつ低薬量で防除しうる薬剤の開発が望まれている。

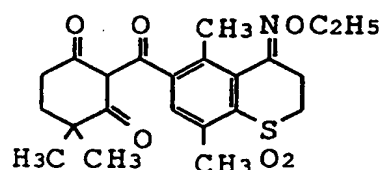
従来、トウモロコシなどの栽培時には、トリアジン系除草剤であるアトラジン (atrazine) や、酸アニリド系除草剤であるアラクロール (alachlor) およびメトラクロール (metolachlor) などが用いられてきたが、アトラジンはイネ科雑草に対する活性が低く、アラクロール、メトラクロールは逆に広葉雑草に対する活性が低い。したがって現在のところ、単一の薬剤でイネ科および広葉の雑草を一度に防除することは困難である。さらに、これらの除草剤は高薬量を必要とし、環境問題上好ましくない。

このような事情に鑑み、本発明者らは、先にチオクロマン環を有する新規なシクロヘキサンジオン誘導体を創製し、特許を出願した (国際公開 94/04524 号公報および 94/08988 号公報)。これらの化合物の代表的な化合物の例を以下に示す。

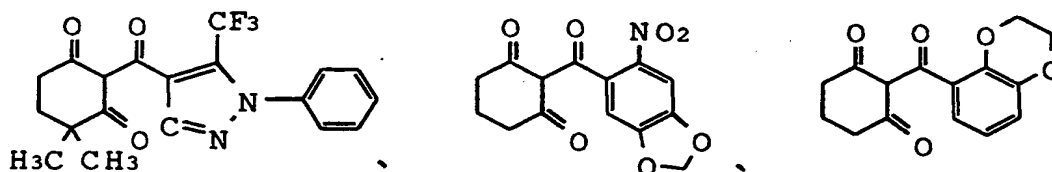
国際公開 94/04524 号公報に記載の化合物



国際公開 94/08988 号公報に記載の化合物



また、2環性を有するシクロヘキサジオン誘導体としては、下記の化合物が開示されている（欧州特許第 94/283261 号明細書）。



しかしながら、これらの化合物はソルゴー、ビートに薬害を示し、茎葉処理、土壌処理のいずれにおいても十分な活性をもつとはいえない。

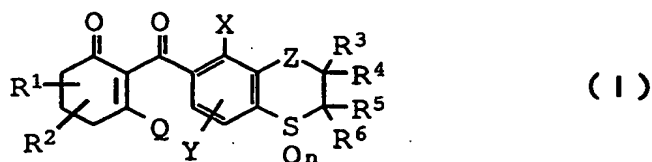
### 発明の開示

本発明は、このような状況下で、トウモロコシなどの作物に薬害がなく、広範な畑地雑草を低薬量で防除しうる新規なシクロヘキサジオン誘導体およびそれを用いた除草剤を提供することを目的とするものである。

そこで、本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、特定の構造のシクロヘキサジオン誘導体が、トウモロコシなどの作物に薬害がなく、広範な畑地雑草を低薬量で防除しうることを見出し、この知見に基づいて本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明の第一の目的は、

(1) 一般式 (I)



[式中、

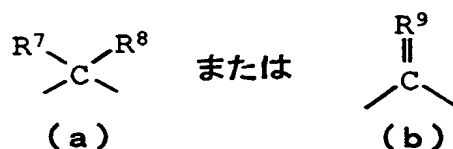
$R^1$ および $R^2$ はそれぞれ独立して、水素原子または $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、  
 $R^3 \sim R^6$ はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基またはハロゲン原子であり、

$n$ は0、1または2であり、

$X$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$ アルコキシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル基であり、

$Y$ は水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基または $C_2 \sim C_6$ アルコキシアルキル基であり、

$Z$ は、



で示される基である。

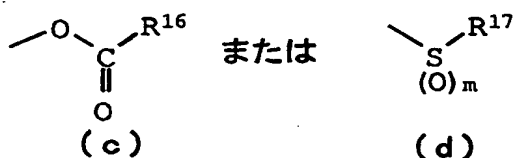
ここで、 $R^7$ および $R^8$ は各々独立して水素原子、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基または基- $NR^{10}R^{11}$ であり、 $R^7$ または $R^8$ あるいはその両方が $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基または $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基である場合には、その水素原子が1～13個のハロゲン原子あるいは $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基によって置換されていてもよく、その炭素数が $C_2 \sim C_6$ であれば不飽和結合を形成していてもよい。また、 $C_3 \sim C_6$ であれば、環状構造をもっているもよい。 $R^{10}$ および $R^{11}$ は水素原子、 $C_1 \sim C_6$

。アルキル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルカルボニル基である。更に $R^7$ および $R^8$ がともに $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基または $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基である場合には、 $R^7$ および $R^8$ 中の炭素原子同士が互いに結合して、3～7員環を形成することもできる。ただし、 $R^7$ および $R^8$ がともにアルキル基である場合には、Xが $C_1 \sim C_6$ アルキル基、ハロゲン原子またはハロアルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。

また、 $R^7$ および $R^8$ のうちいずれか1つがアルコキシ基であり、もう一方が水素原子である場合には、アルコキシ基の水素原子がハロゲンまたはアルコキシ基によって置換されていないか、またはアルコキシ基が不飽和結合または環状構造を含まないとき、Xが $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。

$R^9$ は酸素原子、硫黄原子または $C_1 \sim C_6$ アルコキシイミノ基であり、 $R^9$ が $C_1 \sim C_6$ アルコキシイミノ基である場合には、その水素原子は1～13個のハロゲン原子によって置換されていてもよく、その炭素数が $C_2 \sim C_6$ であれば不飽和結合を形成していてもよい。ただし、 $R^9$ が $C_1 \sim C_6$ アルコキシイミノ基であり、その水素原子がハロゲンによって置換されていないか、または不飽和結合を形成しないとき、Xが $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。

Qは水酸基あるいは基

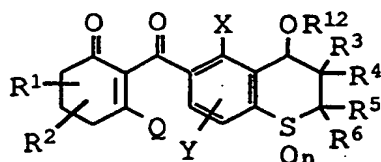


であり、 $R^{16}$ および $R^{17}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、または $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基で置換されてもよいフェニル基である。mは0、1または2である。]

で表されるシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩、

(2) 一般式 (I-a 1)



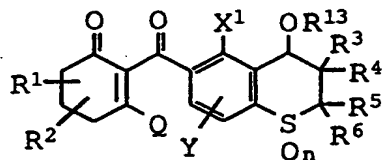


(I-a 1)

[式中、 $R^1 \sim R^6$ 、 $n$ 、 $X$ 、 $Y$ および $Q$ は上記と同じであり、 $R^{12}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基または $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基である。また、 $R^{12}$ は $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基で置換されていてもよいし、炭素数が $C_2 \sim C_6$ であれば不飽和結合を含んでもよく、 $C_3 \sim C_6$ であれば、環状構造をもっているもよい。ただし、 $R^{12}$ が $C_1 \sim C_6$ アルキル基である場合には、 $X$ が $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。]

で表されるシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩、

(3) 一般式 (I-a 2)

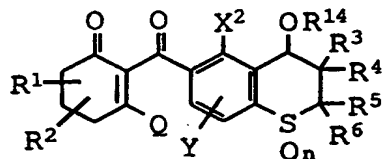


(I-a 2)

[式中、 $R^1 \sim R^6$ 、 $n$ 、 $Y$ および $Q$ は上記と同じであり、 $R^{13}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基である。 $X^1$ は $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$ アルコキシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル基である。]

で表されるシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩、

(4) 一般式 (I-a 3)



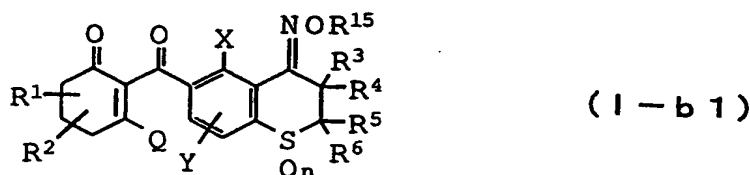
(I-a 3)

[式中、 $R^1 \sim R^6$ 、 $n$ 、 $Y$ および $Q$ は上記と同じであり、 $R^{14}$ は $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、アルコキシアルキル基、アルケニル基、ハロアルケニルアルキル基ま

たはアルキニルアルキル基である。X<sup>2</sup>はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>ハロアルキル基、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>2</sub>～C<sub>6</sub>アルコキシアルキル基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>ハロアルキルチオ基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基またはC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基である。]

で表されるシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩、

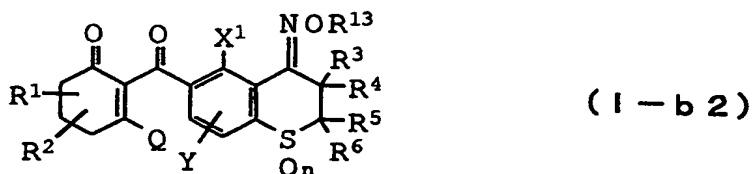
(5) 一般式 (I-b 1)



[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>6</sup>、n、X、YおよびQは上記と同じであり、R<sup>15</sup>はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基またはC<sub>2</sub>～C<sub>6</sub>のアルケニル基である。ただし、R<sup>15</sup>がC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基である場合には、XがC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基であり、かつR<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>およびR<sup>6</sup>がすべて水素原子であるものを除く。]

で表されるシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩、

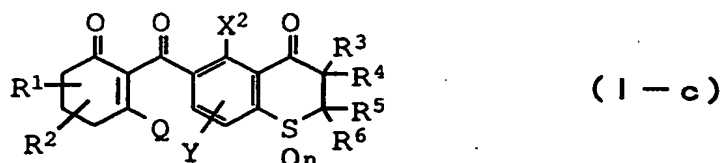
(6) 一般式 (I-b 2)



[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>6</sup>、R<sup>13</sup>、n、X<sup>1</sup>、YおよびQは上記と同じである。]

で表されるシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩、

(7) 一般式 (I-c)



[式中、 $R^1 \sim R^6$ 、 $n$ 、 $X^2$ 、 $Y$ および $Q$ は上記と同じである。]

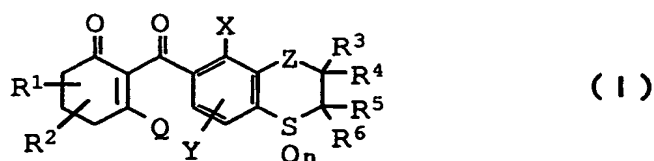
で表されるシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩、  
によって達成される。

また、本発明の第二の目的は、上記一般式 (I)、(I-a 1)、(I-a 2)、(I-a 3)、(I-b 1)、(I-b 2)、(I-c) で表されるシクロヘキサンジオン誘導体およびその塩の中から選ばれた少なくとも1種を有効成分として含有する除草剤（以下、「本発明の除草剤」ということがある）によって達成される。

#### 発明を実施するための最良の形態

まず、本発明のシクロヘキサンジオン誘導体について説明する。

本発明のシクロヘキサンジオン誘導体は、一般式 (I)



で示される化合物である。

一般式 (I) において、 $X$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$ アルコシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル基である。

上記 $C_1 \sim C_6$ アルキル基の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基およびヘキシル基が挙げられ、プロピル基、ブチル基、ペンチル基およびヘキシル基は、直鎖状、環状または分岐を有するものでもよい。C

$C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基は、上記 $C_1 \sim C_6$ アルキル基中の1～13個の水素原子がハロゲン原子（例えば、塩素原子、フッ素原子、臭素原子、ヨウ素原子）で置換されたものであり、その具体例としては $-CF_3$ 、 $-C_2F_5$ 、 $-C_2H_4F$ 、 $-CH_2Cl$ 、 $-CHF_2$ 、 $-CCl_3$ 、 $-C_2H_3Cl_2$ 、 $-C_2H_3F_2$ 、 $-C_2H_2F_3$ 、 $-C_2H_2Cl_3$ 、 $-C_3H_5F$ 、 $-C_4H_9F$ 、 $-CH_2Br$ 、 $-CH_2I$ 、 $-C_3H_4F_3$ 、 $-C_4H_6F_3$ 基等が挙げられる。ハロゲン原子としては、塩素原子、フッ素原子、臭素原子およびヨウ素原子が挙げられる。

$C_1 \sim C_6$ アルコキシ基の具体例としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペントキシ基およびヘキソキシ基が挙げられ、プロポキシ基、ブトキシ基、ペントキシ基およびヘキソキシ基は、直鎖状、環状または分岐を有するものでもよい。 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基は、上記 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基中の1～13個の水素原子がハロゲン原子（例えば、塩素原子、フッ素原子、臭素原子、ヨウ素原子）で置換されたものであり、例えば $-OCF_3$ 、 $-OC_2F_5$ 、 $-OC_2H_4F$ 、 $-OC_2H_4Cl$ 、 $-OCHF_2$ 、 $-OCH_2F$ 、 $-OCCl_3$ 、 $-OC_2H_3Cl_2$ 、 $-OC_2H_3F_2$ 、 $-OCH_2Br$ 、 $-OCH_2I$ 等が挙げられる。

$C_2 \sim C_6$ アルコキシアルキル基は、上記アルキル基中の1個の水素原子が $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基（メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、*i*-プロポキシ基、*n*-ブトキシ基、*i*-ブトキシ基、*s*-ブトキシ基、*t*-ブトキシ基、*n*-ヘキソキシ基、*i*-ヘキソキシ基、*s*-ヘキソキシ基、*t*-ヘキソキシ基のいずれか）で置換されたものであり、その具体例としては、例えば $-CH_2OCH_3$ 、 $-CH_2OC_2H_5$ 、 $-CH_2OC_3H_7$ 、 $-C(CH_3)_2OCH_3$ 、 $-C(CH_3)_2OC_2H_5$ 、 $-CH_2CH_2OCH_3$ 、 $-CH_2CH_2OC_2H_5$ 、 $-CH_2(CH_2)_2OCH_3$ 、 $-CH_2C(CH_3)_2OCH_3$ 、 $-CH_2CH_2CH_2OCH_3$ 、 $-CH(CH_3)CH_2OCH_3$ などが挙げられる。

$C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基の具体例としては、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ブチルチオ基、ペンチルチオ基およびヘキシルチオ基が挙げられ、プロピルチオ基、ブチルチオ基、ペンチルチオ基およびヘキシルチオ基は、直鎖状、環状または分岐を有するものでもよい。 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキルチオ基は、上記 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基中の1～13個の水素原子がハロゲン原子（例えば、

塩素原子、フッ素原子、臭素原子、ヨウ素原子)で置換されたものであり、例えば  $-\text{SCF}_3$ 、 $-\text{SC}_2\text{F}_5$ 、 $-\text{SC}_2\text{H}_4\text{F}$ 、 $-\text{SC}_2\text{H}_4\text{Cl}$ 、 $-\text{SCHF}_2$ 、 $-\text{SCH}_2\text{F}$ 、 $-\text{SCCl}_3$ 、 $-\text{SC}_2\text{H}_5\text{Cl}_2$ 、 $-\text{SC}_2\text{H}_5\text{F}_2$ 、 $-\text{SCH}_2\text{Br}$ 、 $-\text{SCH}_2\text{I}$  等が挙げられる。

$\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキルスルフィニル基の具体例としては、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、プロピルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、ペンチルスルフィニル基およびヘキシルスルフィニル基が挙げられ、プロピルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、ペンチルスルフィニル基およびヘキシルスルフィニル基は、直鎖状、環状または分岐を有するものでもよい。 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキルスルホニル基の例としては、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、プロピルスルホニル基、ブチルスルホニル基、ペンチルスルホニル基およびヘキシルスルホニル基が挙げられ、プロピルスルホニル基、ブチルスルホニル基、ペンチルスルホニル基およびヘキシルスルホニル基は、直鎖状、環状または分岐を有するものでもよい。

このXの好ましいものは、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキル基、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ ハロアルキル基またはハロゲン原子であるが、メチル基、塩素原子または $-\text{CF}_3$ 基がより好ましい。

Yは水素原子、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキル基、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルコキシ基、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ ハロアルコキシ基または $\text{C}_2\sim\text{C}_6$ アルコキシアルキル基である。

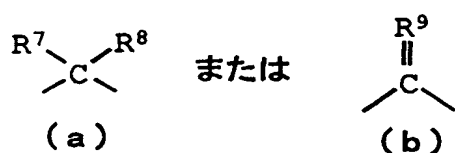
ここで、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキル基、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルコキシ基、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ ハロアルコキシ基または $\text{C}_2\sim\text{C}_6$ アルコキシアルキル基としては、上記Xにおいて例示したものと同一ものを挙げることもできる。Yの置換位置は、チオクロマン環の7位または8位であるが、特に8位が好ましい。このYの好ましいものは、水素原子、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキル基、ハロゲン原子であるが、特に、水素原子、メチル基または塩素原子が好ましい。

$\text{R}^1$ および $\text{R}^2$ はそれぞれ独立して、水素原子または $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキル基であり、 $\text{R}^3$ 、 $\text{R}^4$ 、 $\text{R}^5$ および $\text{R}^6$ はそれぞれ独立して水素原子、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキル基、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ ハロアルキル基またはハロゲン原子である。 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキル基、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子の具体例については、Xで例示したとおりである。

$R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ はそれぞれ独立して水素原子またはメチル基などの $C_1 \sim C_6$ アルキル基が好ましく、特に好ましくは水素原子またはメチル基である。

$n$ はチオクロマン環の硫黄原子に結合する酸素原子の数を表し、0（スルフィド）、1（スルホキシド）または2（スルホン）であり、好ましくは0（スルフィド）または2（スルホン）である。

Zは、



で示される基である。

Z中の基(a)において、 $R^7$ および $R^8$ は各々独立して水素原子、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基または基- $NR^{10}R^{11}$ であり、 $R^7$ 又は $R^8$ あるいはその両方が $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基または $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基である場合には、その水素原子が1～13個のハロゲン原子あるいは $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基によって置換されていてもよく、その炭素数が $C_2 \sim C_6$ であれば不飽和結合を形成していてもよい。また、 $C_3 \sim C_6$ であれば、環状構造をもっているもよい。 $R^{10}$ および $R^{11}$ は水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルカルボニル基である。更に $R^7$ および $R^8$ がともに $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基または $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基である場合には、 $R^7$ および $R^8$ 中の炭素原子同士が互いに結合して、3～7員環を形成することもできる。

ただし、 $R^7$ および $R^8$ がともにアルキル基である場合には、Xが $C_1 \sim C_6$ アルキル基、ハロゲン原子またはハロアルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。

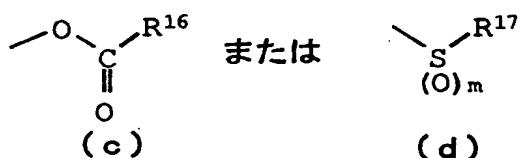
また、 $R^7$ および $R^8$ のうちいずれか1つがアルコキシ基であり、もう一方が水素原子である場合には、アルコキシ基の水素原子がハロゲンまたはアルコキシ基によって置換されていないか、またはアルコキシ基が不飽和結合または環状構造を含まないとき、Xが $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$

がすべて水素原子であるものを除く。

上記 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^{10}$ および $R^{11}$ におけるハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基および $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基の具体例としては、Xで例示したとおりである。また $R^{10}$ および $R^{11}$ における $C_1 \sim C_6$ アルキルカルボニル基の例としては、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基およびバレリル基などが挙げられ、ブチリル基およびバレリル基などは、直鎖状、環状または分岐を有するものでもよい。

Z中の基(b)において、 $R^9$ は酸素原子、硫黄原子または $C_1 \sim C_6$ アルコキシイミノ基であり、 $R^9$ が $C_1 \sim C_6$ アルコキシイミノ基である場合には、その水素原子は1～13個のハロゲン原子によって置換されていてもよく、その炭素数が $C_2 \sim C_6$ であれば不飽和結合を形成していてもよい。ただし、 $R^9$ が $C_1 \sim C_6$ アルコキシイミノ基であり、その水素原子がハロゲンによって置換されていないか、または不飽和結合を形成しないとき、Xが $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。アルコキシイミノ基の好ましい例としては、メトキシイミノ基、エトキシイミノ基が挙げられる。

Qは水酸基あるいは

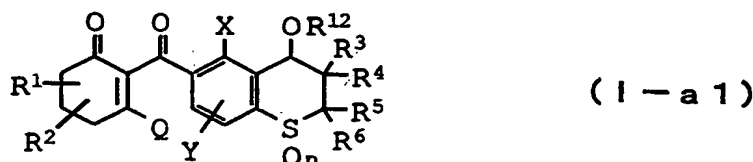


で示される基である。

Q中の基(c)および(d)において、 $R^{16}$ および $R^{17}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、または $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基で置換されてもよいフェニル基である。 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基の具体例としては、上記Xにおいて例示したものを挙げるができる。また $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基は、フェニル基に0～5個導入されていてもよく、その置換位置は2位～6位まで挙げるができる。mは0、1または2であり、0 (スルフィド)、1 (スルフォキシド)、2 (スルホン) を示

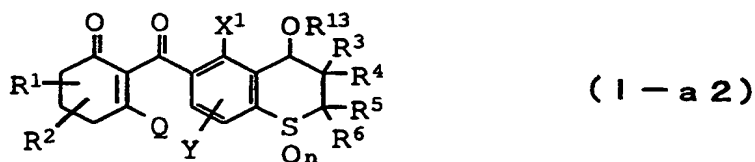
す。

この一般式 (I) で表されるシクロヘキサジオン誘導体としては、  
一般式 (I-a 1)



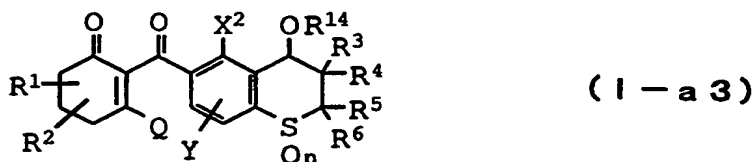
[式中、 $R^1 \sim R^6$ 、 $n$ 、 $X$ 、 $Y$ および $Q$ は上記と同じであり、 $R^{12}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基または $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基である。また、 $R^{12}$ は $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基で置換されていてもよいし、炭素数が $C_2 \sim C_6$ であれば不飽和結合を含んでいてもよく、 $C_3 \sim C_6$ であれば、環状構造をもっているもよい。ただし、 $R^{12}$ が $C_1 \sim C_6$ アルキル基である場合には、 $X$ が $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。]

で表されるものが好ましく、この中では、特に一般式 (I-a 2)



[式中、 $R^1 \sim R^6$ 、 $n$ 、 $Y$ および $Q$ は上記と同じであり、 $R^{13}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基である。 $X^1$ は $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$ アルコシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル基である。]

で表されるもの、および一般式 (I-a 3)



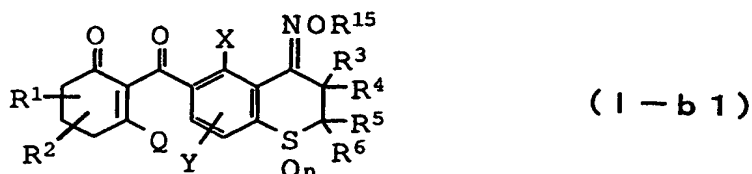
[式中、 $R^1 \sim R^6$ 、 $n$ 、 $Y$ および $Q$ は上記と同じであり、 $R^{14}$ は $C_1 \sim C_6$ ハロア



ルキル基、アルコキシアルキル基、アルケニル基、ハロアルケニルアルキル基またはアルキニルアルキル基である。X<sup>2</sup>はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>ハロアルキル基、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>2</sub>～C<sub>6</sub>アルコキシアルキル基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>ハロアルキルチオ基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基またはC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基である。]

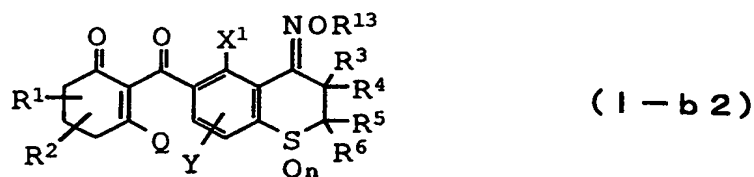
で表されるものが好適である。

また、一般式 (I-b 1)



[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>6</sup>、n、X、YおよびQは上記と同じであり、R<sup>15</sup>はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基またはC<sub>2</sub>～C<sub>6</sub>のアルケニル基である。ただし、R<sup>15</sup>がC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基である場合には、XがC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基であり、かつR<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>およびR<sup>6</sup>がすべて水素原子であるものを除く。]

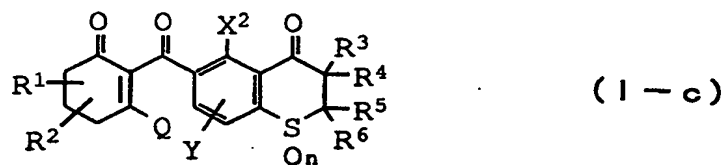
で表されるものも好ましく、この中では、特に一般式 (I-b 2)



[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>6</sup>、R<sup>13</sup>、n、X<sup>1</sup>、YおよびQは上記と同じである。]

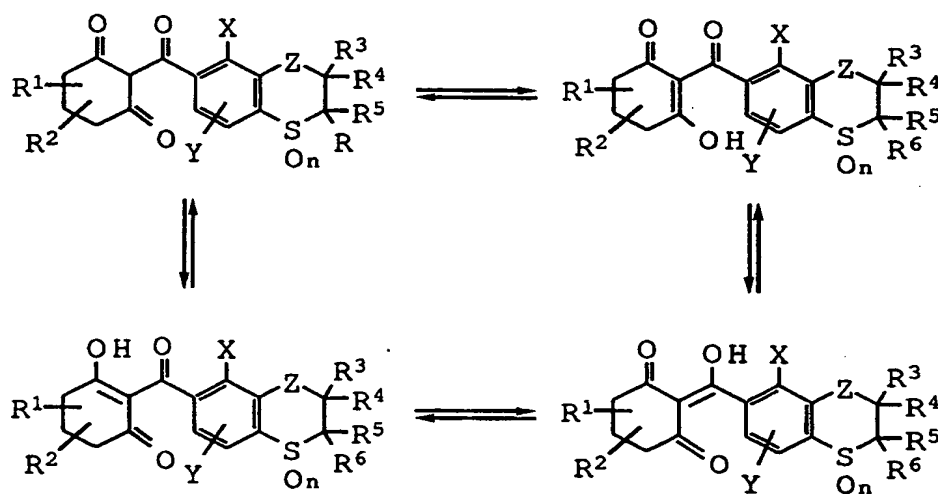
で表されるものが好適である。

さらに、一般式 (I-c)



[式中、 $R^1 \sim R^6$ 、 $n$ 、 $X^2$ 、 $Y$ および $Q$ は上記と同じである。]  
で表されるものも好ましく挙げることができる。

この一般式 (I) で表されるシクロヘキサノン誘導体は、 $Q$ が水酸基の場合、以下に示すような互変異性体の構造をとりうるが、本発明のシクロヘキサノン誘導体は、これら全ての構造の化合物およびそれらの混合物をも包含するものである。



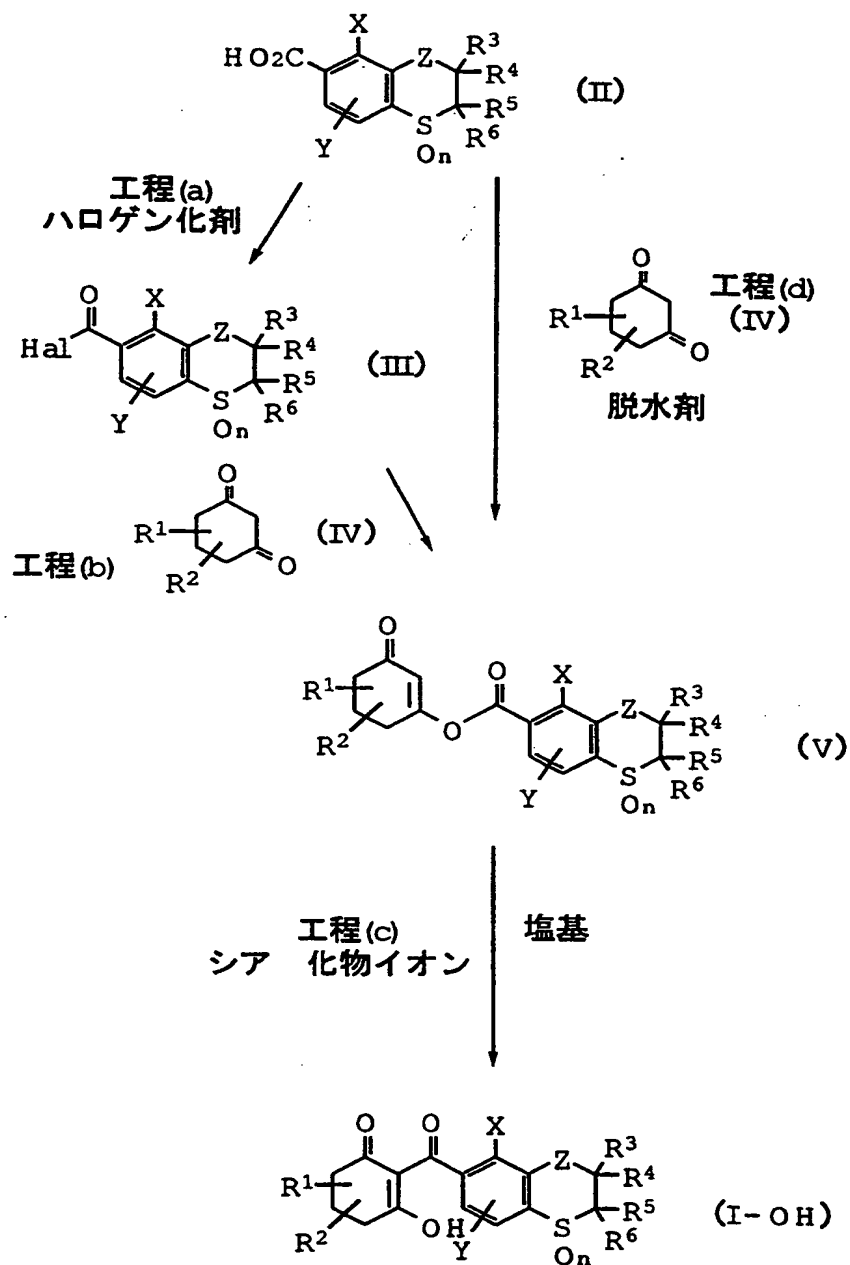
(式中、 $X$ 、 $Y$ 、 $Z$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ および $n$ は前記定義のとおりである。)

さらに、一般式 (I) で表されるシクロヘキサノン誘導体は、酸性物質であり、塩基と処理することにより容易に塩とすることができ、この塩も本発明のシクロヘキサノン誘導体に包含されるものである。

ここで、塩基として公知のものであればよく、特に制限はないが、たとえばアミン類やアニリン類などの有機塩基やアンモニア、ナトリウム化合物、カリウム化合物などの無機塩基が挙げられる。アミン類としてはモノアルキルアミン、ジ

アルキルアミン、トリアルキルアミンなどのアルキルアミン類が挙げられる。アルキルアミン類の中のアルキル基は通常 $C_1 \sim C_4$ アルキル基である。アニリン類としてはアニリンやモノアルキルアニリン、ジアルキルアニリンなどのアルキルアニリン類が挙げられる。アルキルアニリン類中のアルキル基としては通常 $C_1 \sim C_4$ アルキル基である。ナトリウム化合物としては水酸化ナトリウム、炭酸ナトリウムなどがあり、カリウム化合物としては、水酸化カリウム、炭酸カリウムなどが挙げられる。

一般式 (I) で示される本発明のシクロヘキサンジオン誘導体は、QがOHの場合 [一般式 (I-OH)]、例えば下記の方法により製造される。



(Halはハロゲンを示す。)

(式中、X、Y、Z、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ およびnは前記定義のとおりである。)

すなわち、一般式 (II) で表わされる化合物を、ハロゲン化剤と反応させて、一般式 (III) で表される化合物を得、次いでこの化合物を一般式 (IV) に示す化

化合物と反応させて、一般式 (V) で表される化合物を得、次いでこの化合物を転位反応させることにより、一般式 (I-OH) で示されるシクロヘキサンジオン誘導体を得られる。

また、一般式 (V) で表される化合物は、一般式 (II) で表される化合物をジシクロヘキシルカルボジイミド (以下、「DCC」という) などの脱水剤の存在下、一般式 (IV) に示す化合物と反応させることによっても得られる。

次に、各工程について説明する。

#### 工程 (a)

工程 (a) は一般式 (II) の化合物をハロゲン化剤 (塩化チオニル、オキシ塩化リン等) と反応させて一般式 (III) の化合物を得る工程である。この工程 (a) においては、一般式 (II) の化合物に対して等モル以上のハロゲン化剤を用いて行うのが好ましい。この反応は不活性溶媒 (塩化メチレン、クロロホルム等) で希釈して行ってもよく、無溶媒で行ってもよい。また、ハロゲン化剤である塩化チオニルを溶媒として過剰に用いてもよい。反応温度は特に制限はないが、0℃～溶媒の沸点までの温度が好ましく、60℃またはその近傍が特に好ましい。

#### 工程 (b)

工程 (b) は、工程 (a) で得られた一般式 (III) の化合物を一般式 (IV) の化合物と反応させて一般式 (V) の化合物を得る工程である。この工程 (b) においては、一般式 (III) の化合物と一般式 (IV) の化合物のモル比率を1:1～1:3程度にして、反応に不活性な溶媒、例えばジオキサン、アセトニトリル、ベンゼン、トルエン、クロロホルム、塩化メチレン、1,2-ジクロロエタンなどの溶媒中で行うのが好ましい。また、反応を水-ベンゼン、水-トルエン、水-クロロホルムなどの2相系溶媒中で行うこともできる。水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、トリエチルアミン、ピリジン等の塩基をモル当量以上に共存させることにより、反応は円滑に進行する。反応温度は0～60℃が好ましいが、特に好ましくは0℃～室温の範囲内である。

#### 工程 (c)

工程 (c)、工程 (b) で得られた一般式 (V) の化合物を転位反応させて一般式 (I-OH) のシクロヘキサンジオン誘導体を得る工程である。この工程

(c) においては、反応に不活性な溶媒、例えば塩化メチレン、1, 2-ジクロロエタン、トルエン、アセトニトリル、N, N-ジメチルホルムアミド、酢酸エチルなどの溶媒中で行うのが好ましい。特に好ましい溶媒はアセトニトリルである。工程 (c) においては、適当な塩基（炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、トリエチルアミン、ピリジン等）を一般式 (V) の化合物に対して通常 1 ~ 4 倍当量、好ましくは 1 ~ 2 倍当量使用して反応させる。この際、シアン化水素もしくはシアン化物陰イオンを反応系内に発生させることのできる化合物、いわゆる『シアン化物源』を触媒的に共存させることによって、反応は円滑に進行する。シアン化物源としては、例えばシアン化ナトリウム、シアン化カリウムのような金属シアン化物、アセトンシアンヒドリン、メチルイソプロピルケトンシアンヒドリンのような低級アルキル ( $C_3 \sim C_5$ ) ケトンのシアンヒドリン化合物などが挙げられ、金属シアン化物を用いる場合には、反応中に、例えばクラウンエーテルのような相間移動触媒を添加することにより、反応を円滑に進行させることができる。反応におけるシアン化物源の使用量は、一般式 (V) の化合物に対して通常 0.01 ~ 0.5 モル当量、好ましくは 0.05 ~ 0.2 モル当量である。反応温度は 0 ~ 80 °C が好ましいが、特に好ましくは 20 ~ 40 °C の範囲内である。

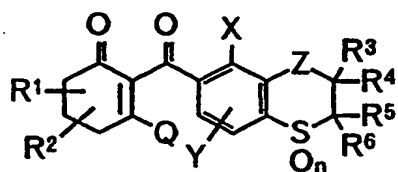
#### 工程 (d)

この工程 (d) は、一般式 (V) の化合物を得るための上記とは異なる方法を示すものである。すなわち、化合物 (II) と化合物 (IV) を DCC などの脱水剤を用いて縮合反応させることにより、化合物 (V) を得る工程である。この縮合反応の際に用いる反応溶媒は、反応に不活性な溶媒であれば特に制限はないが、好ましくはアセトニトリル、第 3 アミン、アルコールなどである。反応温度は、0 °C ~ 溶媒の沸点までの範囲であれば特に制限はないが、通常は室温が好ましい。脱水剤としては、上述の DCC の他に 1, 1-カルボニルジイミダゾール (CDI)、1-(3-ジメチルアミノプロピル)-3-エチルカルボジイミド (EDC) などを用いることもできる。脱水剤の添加量は、化合物に対して通常 1.0 ~ 3.0 当量、好ましくは 1.0 ~ 1.5 当量である。化合物 (II) と化合物 (IV) の割合は、モル比率で通常 1 : 1 ~ 1 : 3 の範囲であり、好ましくは 1 : 1 ~ 1 : 1.5 である。化合物 (II) と化合物 (IV) との縮合反応の反応時間は、

1～48時間の範囲で十分であるが、通常は8時間程度で反応は完結する。

このようにして得られた一般式(I-OH)で表される本発明のシクロヘキサ  
ンジオン誘導体の好ましいものの例を表1～表23に示す。

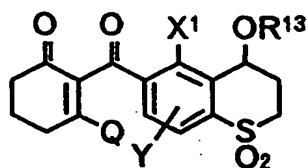
表1



[一般式(I)において、Q=OH、  
R<sup>1</sup>=R<sup>2</sup>=R<sup>5</sup>=R<sup>6</sup>=H、n=2]

化合物No.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X	Y	Z
1	H	H	Cl	8-F	
2	H	H	Cl	8-F	
3	H	H	Cl	8-CH <sub>3</sub>	
4	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CF <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
5	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	

表 2

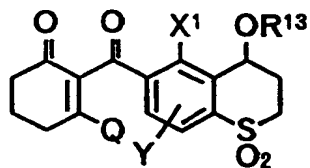


[一般式(I-a 2)において、 $Q=OH$ 、 $R^1=R^2=R^3=R^4=R^5=R^6=H$   
 $n=2$ ]

化合物No.	X <sup>1</sup>	Y	R <sup>13</sup>
6	Cl	H	-CH <sub>3</sub>
7	Cl	H	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
8	Cl	H	-n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
9	Cl	H	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
10	Cl	H	-s-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
11	Cl	H	-i-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
12	Cl	H	-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
13	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
14	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
15	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
16	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-s-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
17	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-i-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
18	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>



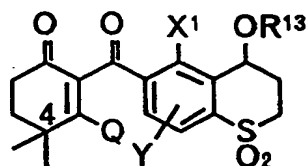
表 3



[一般式(1-a 2)において、 $Q=OH$ 、  
 $R^1=R^2=R^3=R^4=R^5=R^6=H$   
 $n=2$ ]

化合物No.	$X^1$	Y	$R^{13}$
19	Cl	8-F	-CH <sub>3</sub>
20	Cl	8-F	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
21	Cl	8-F	-n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
22	Cl	8-F	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
23	Cl	8-F	-s-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
24	Cl	8-F	-l-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
25	Cl	8-F	-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
26	Cl	8-Cl	-CH <sub>3</sub>
27	Cl	8-Cl	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
28	Cl	8-Cl	-n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
29	Cl	8-Cl	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
30	Cl	8-Cl	-s-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
31	Cl	8-Cl	-l-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
32	Cl	8-Cl	-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>

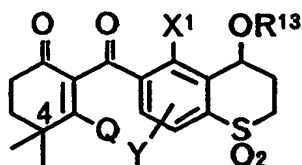
表 4



[一般式(I-a 2)において、Q=OH、  
R¹およびR²はメチル基であり、ともに  
シクロヘキサノン環の第4位に結合し、  
R³=R⁴=R⁵=R⁶=H n=2]

化合物No.	X¹	Y	R¹³
33	Cl	H	-CH₃
34	Cl	H	-C₂H₅
35	Cl	H	-n-C₃H₇
36	Cl	H	-i-C₃H₇
37	Cl	H	-s-C₄H₉
38	Cl	H	-l-C₄H₉
39	Cl	H	-t-C₄H₉
40	Cl	8-CH₃	-CH₃
41	Cl	8-CH₃	-C₂H₅
42	Cl	8-CH₃	-n-C₃H₇
43	Cl	8-CH₃	-l-C₃H₇
44	Cl	8-CH₃	-s-C₄H₉
45	Cl	8-CH₃	-l-C₄H₉
46	Cl	8-CH₃	-t-C₄H₉

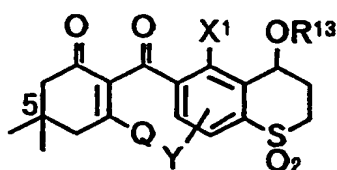
表 5



[一般式(1-a 2)において、Q=OH、  
R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>はメチル基であり、ともに  
シクロヘキサンジオン環の第4位に結合し、  
R<sup>3</sup>=R<sup>4</sup>=R<sup>5</sup>=R<sup>6</sup>=H n=2]

化合物No.	X <sup>1</sup>	Y	R <sup>13</sup>
47	Cl	8-F	-CH <sub>3</sub>
48	Cl	8-F	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
49	Cl	8-F	-n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
50	Cl	8-F	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
51	Cl	8-F	-s-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
52	Cl	8-F	-i-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
53	Cl	8-F	-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
54	Cl	8-Cl	-CH <sub>3</sub>
55	Cl	8-Cl	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
56	Cl	8-Cl	-n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
57	Cl	8-Cl	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
58	Cl	8-Cl	-s-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
59	Cl	8-Cl	-i-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>
60	Cl	8-Cl	-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>

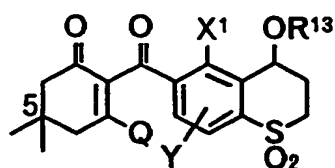
表 6



[一般式(I-a 2)において、Q=OH、  
R¹およびR²はメチル基であり、ともに  
シクロヘキサノン環の第5位に結合し、  
R³=R⁴=R⁵=R⁶=H n=2]

化合物No.	X¹	Y	R¹³
61	Cl	H	-CH₃
62	Cl	H	-C₂H₅
63	Cl	H	-n-C₃H₇
64	Cl	H	-i-C₃H₇
65	Cl	H	-s-C₄H₉
66	Cl	H	-i-C₄H₉
67	Cl	H	-t-C₄H₉
68	Cl	8-CH₃	-CH₃
69	Cl	8-CH₃	-C₂H₅
70	Cl	8-CH₃	-n-C₃H₇
71	Cl	8-CH₃	-i-C₃H₇
72	Cl	8-CH₃	-s-C₄H₉
73	Cl	8-CH₃	-i-C₄H₉
74	Cl	8-CH₃	-t-C₄H₉

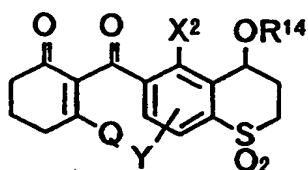
表 7



[一般式(I-a 2)において、Q=OH、  
R¹およびR²はメチル基であり、ともに  
シクロヘキサノン環の第5位に結合し、  
R³=R⁴=R⁵=R⁶=H n=2]

化合物No..	X¹	Y	R¹³
75	Cl	8-F	-CH₃
76	Cl	8-F	-C₂H₅
77	Cl	8-F	-n-C₃H₇
78	Cl	8-F	-i-C₃H₇
79	Cl	8-F	-s-C₄H₉
80	Cl	8-F	-i-C₄H₉
81	Cl	8-F	-t-C₄H₉
82	Cl	8-Cl	-CH₃
83	Cl	8-Cl	-C₂H₅
84	Cl	8-Cl	-n-C₃H₇
85	Cl	8-Cl	-i-C₃H₇
86	Cl	8-Cl	-s-C₄H₉
87	Cl	8-Cl	-i-C₄H₉
88	Cl	8-Cl	-t-C₄H₉

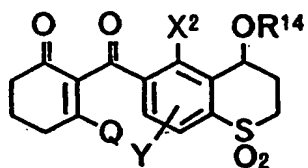
表 8



[一般式(1-a 3)において、Q=OH、  
 $R^1=R^2=R^3=R^4=R^5=R^6=H$   
 $n=2$ ]

化合物No.	X <sup>2</sup>	Y	R <sup>14</sup>
89	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
90	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
91	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
92	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
93	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl
94	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
95	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
96	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
97	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
98	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl
99	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
100	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
101	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
102	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
103	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl

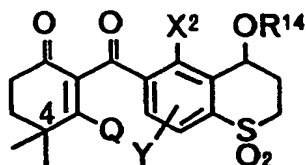
表 9



[一般式(1-a 3)において、Q=OH、  
 $R^1=R^2=R^3=R^4=R^5=R^6=H$   
 $n=2$ ]

化合物No.	X <sup>2</sup>	Y	R <sup>14</sup>
104	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
105	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
106	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
107	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
108	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl
109	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
110	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
111	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
112	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
113	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl

表 10

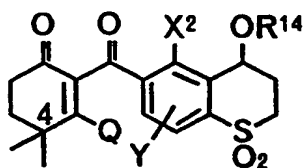


[一般式(I-a 3)において、Q=OH、  
R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>はメチル基であり、ともに  
シクロヘキサノン環の第4位に結合し、  
R<sup>3</sup>=R<sup>4</sup>=R<sup>5</sup>=R<sup>6</sup>=H n=2]

化合物No.	X <sup>2</sup>	Y	R <sup>14</sup>
114	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
115	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
116	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
117	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
118	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl
119	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
120	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
121	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
122	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
123	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl
124	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
125	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
126	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
127	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
128	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl



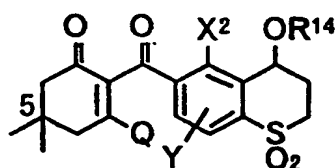
表 1 1



[一般式(I-a 3)において、Q=OH、  
R¹およびR²はメチル基であり、ともに  
シクロヘキサンジオン環の第4位に結合し、  
R³=R⁴=R⁵=R⁶=H n=2]

化合物No.	X <sup>2</sup>	Y	R <sup>14</sup>
129	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
130	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
131	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
132	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
133	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl
134	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
135	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
136	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
137	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
138	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl

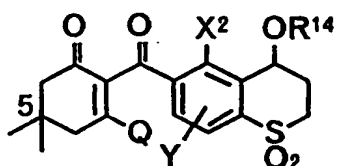
表 1 2



[一般式(1-a 3)において、Q=OH、  
R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>はメチル基であり、ともに  
シクロヘキサンジオン環の第5位に結合し、  
R<sup>3</sup>=R<sup>4</sup>=R<sup>5</sup>=R<sup>6</sup>=H n=2]

化合物No.	X <sup>2</sup>	Y	R <sup>14</sup>
139	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
140	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
141	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
142	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
143	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl
145	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
146	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
147	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
148	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
149	CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl
150	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
151	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
152	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
153	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
154	Cl	H	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl

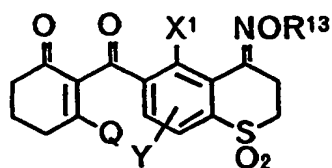
表 1 3



[一般式(I-a 3)において、Q=OH、  
R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>はメチル基であり、ともに  
シクロヘキサンジオン環の第5位に結合し、  
R<sup>3</sup>=R<sup>4</sup>=R<sup>5</sup>=R<sup>6</sup>=H n=2]

化合物No.	X <sup>2</sup>	Y	R <sup>14</sup>
155	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
156	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
157	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
158	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
159	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl
160	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
161	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>
162	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>
163	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F
164	Cl	8-Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl

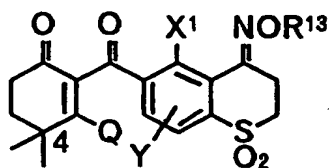
表 1 4



[一般式(I-b 2)において、 $Q=OH$ 、 $R^1=R^2=R^3=R^4=R^5=R^6=H$   $n=2$ ]

化合物No.	X <sup>1</sup>	Y	R <sup>13</sup>
165	Cl	H	-CH <sub>3</sub>
166	Cl	H	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
167	Cl	H	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
168	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>
169	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
170	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
171	Cl	8-F	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
172	Cl	8-F	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
173	Cl	8-Cl	-CH <sub>3</sub>
174	Cl	8-Cl	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
175	Cl	8-Cl	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>

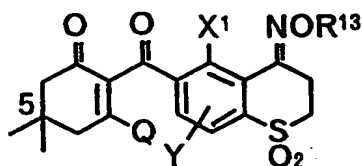
表 1 5



[一般式(1-b2)において、Q=OH、  
R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>がメチル基であり、  
シクロヘキサノン環の第4位に  
結合しており、R<sup>3</sup>=R<sup>4</sup>=R<sup>5</sup>=R<sup>6</sup>=H、n=2]

化合物No.	X <sup>1</sup>	Y	R <sup>13</sup>
176	Cl	H	-CH <sub>3</sub>
177	Cl	H	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
178	Cl	H	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
179	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>
180	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
181	Cl	8-CH <sub>3</sub>	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
182	Cl	8-F	-CH <sub>3</sub>
183	Cl	8-F	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
184	Cl	8-F	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
185	Cl	8-Cl	-CH <sub>3</sub>
186	Cl	8-Cl	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
189	Cl	8-Cl	-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>

表 1 6

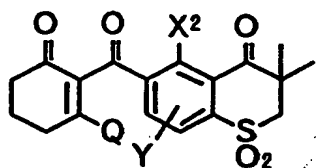


[一般式(1-b2)において、Q=OH、  
R¹およびR²がメチル基であり、  
シクロヘキサンジオン環の第5位に  
結合しており、R³=R⁴=R⁵=R⁶=H、n=2]

化合物No.	X¹	Y	R¹³
190	Cl	H	-CH₃
191	Cl	H	-C₂H₅
192	Cl	H	-i-C₃H₇
193	Cl	8-CH₃	-CH₃
194	Cl	8-CH₃	-C₂H₅
195	Cl	8-CH₃	-i-C₃H₇
196	Cl	8-F	-CH₃
197	Cl	8-F	-C₂H₅
198	Cl	8-F	-i-C₃H₇
199	Cl	8-Cl	-CH₃
200	Cl	8-Cl	-C₂H₅
201	Cl	8-Cl	-i-C₃H₇

表 1 7

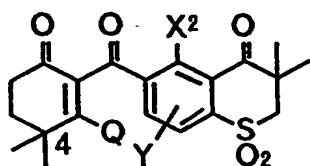
表 1 7



[一般式(I-c)において、 $Q=OH$ 、 $R^3=R^4=CH_3$ 、 $R^1=R^2=R^5=R^6=H$   $n=2$ ]

化合物No.	$X^2$	Y
202	$CH_3$	H
203	Cl	H
204	Cl	8- $CH_3$
205	Cl	8-Cl

表 18

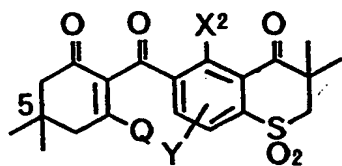


[一般式(I-c)において、 $Q=OH$ 、 $R^1$ および $R^2$ がメチル基であり、シクロヘキサノン環の第4位に結合しており、 $R^3=R^4=CH_3$ 、 $R^5=R^6=H$   $n=2$ ]

化合物No.	$X^2$	Y
206	$CH_3$	H
207	$CH_3$	8- $CH_3$
208	Cl	H
209	Cl	8- $CH_3$
210	Cl	8-Cl



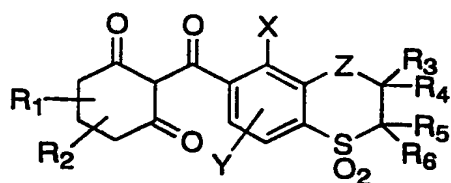
表 19



[一般式(I-c)において、Q=OH、  
R¹およびR²がメチル基であり、シクロヘ  
キサンジオン環の第5位に結合しており、  
R³=R⁴=CH₃、R⁵=R⁶=H n=2]

化合物No.	X²	Y
211	CH₃	H
212	CH₃	8-CH₃
213	Cl	H
214	Cl	8-CH₃
215	Cl	8-Cl

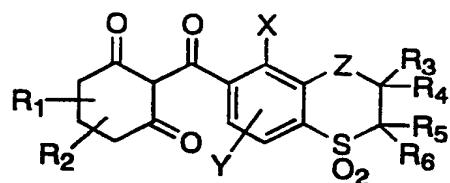
表 20



一般式 (I) において  $Q=OH$ ,  
 $R_1=R_2=R_3=R_4=R_5=R_6=H$ ,  $n=2$

化合物 No.	X	Y	Z
216	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
217	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
218	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
219	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
220	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
221	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
222	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
223	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
224	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	

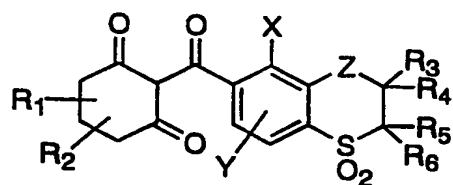
表 21



一般式 (I) においてQ=OH,  
 $R_1=R_2=R_3=R_4=R_5=R_6=H$ ,  $n=2$

化合物 No.	X	Y	Z
225	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
226	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
227	-CH <sub>3</sub>	H	
228	-CH <sub>3</sub>	H	
229	-CH <sub>3</sub>	H	
230	-CH <sub>3</sub>	H	
231	-CH <sub>3</sub>	H	
232	-Cl	8-CH <sub>3</sub>	

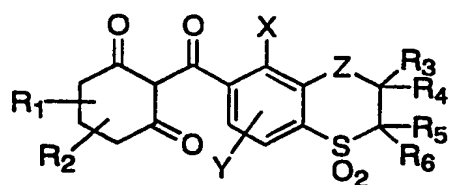
表 22



一般式 (I) において  $Q=OH$ ,  
 $R_1=R_2=R_3=R_4=R_5=R_6=H$ ,  $n=2$

化合物 No.	X	Y	Z
233	-Cl	8-CH <sub>3</sub>	
234	-Cl	8-CH <sub>3</sub>	
235	-Cl	8-CH <sub>3</sub>	
236	-Cl	8-CH <sub>3</sub>	
237	-Cl	H	
238	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
239	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	
240	-CH <sub>3</sub>	8-CH <sub>3</sub>	

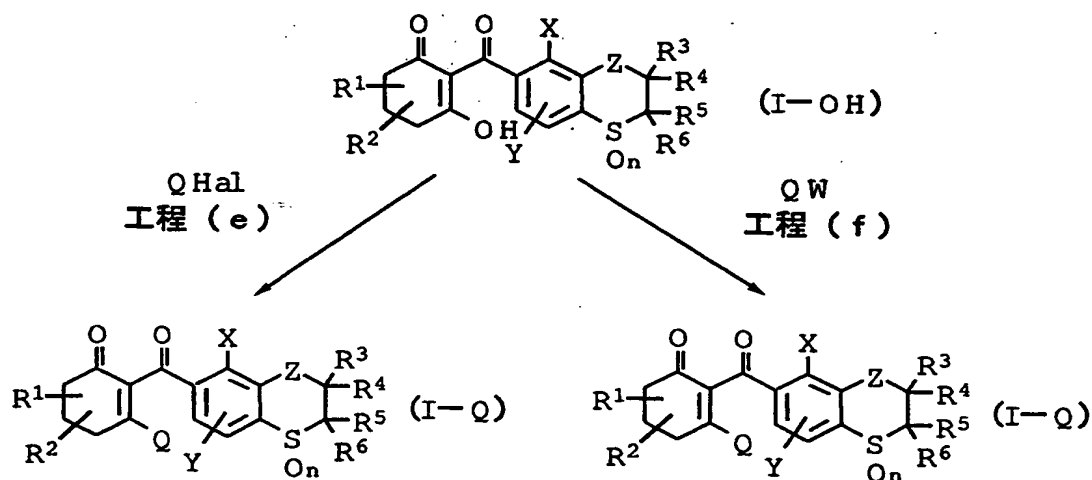
表 23



一般式 (I) において  $Q=OH$ ,  
 $R_1=R_2=R_3=R_4=R_5=R_6=H$ ,  $n=2$

化合物 No.	X	Y	Z
241	-CH <sub>3</sub>	H	
242	-Cl	8-CH <sub>3</sub>	
243	-Cl	8-CH <sub>3</sub>	
244	-Cl	8-CH <sub>3</sub>	
245	-Cl	H	
246	-Cl	8-Cl	

一般式 (I) で示される本発明のシクロヘキサジオン誘導体は、QがOH以外の場合 [一般式 (I-Q)]、例えば下記の方法により製造される。



(Halはハロゲンを示す。)  
(wはハロゲン、水酸基或いは水素原子を示す。)

(式中X、Y、Z、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>、R<sup>6</sup>、およびnは前記定義のとおりである。)

すなわち、一般式 (I-OH) で表される化合物をQH a l で表される化合物と反応させて一般式 (I-Q) で表される化合物が得られる。

また塩の誘導体は塩基Qと反応させることによって得られる。

次に各工程について説明する。

#### 工程 (e)

工程 (e) は一般式 (I-OH) の化合物をQH a l で表される化合物と反応させて (I-Q) の化合物を得る工程である。この工程 (e) においては、一般式 (I-OH) の化合物に対して等モル以上のQH a l で表される化合物と有機塩基或いは無機塩基を用いて行うことが望ましい。この反応は反応に不活性な溶媒、例えばジオキサン、ベンゼン、トルエン、クロロホルム、塩化メチレン、1, 2-ジクロロエタン、テトラヒドロフランなどの溶媒中で行うことが望ましい。また、反応を水-ベンゼン、水-クロロホルムなどの2相系中で行うことができる。水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、トリ

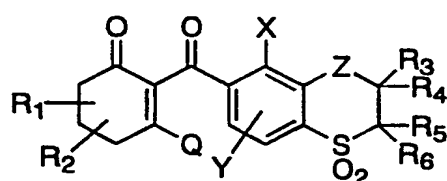
エチルアミン、ビリジンなどの塩基を等モル以上に共存させることにより、反応は円滑に進行する。反応温度は0～60℃が好ましいが、特に好ましくは0℃～室温の範囲内である。

### 工程 (f)

工程 (f) は一般式 (I-OH) の化合物をQWで表される化合物と反応させて (I-Q) の化合物を得る工程である。この工程 (f) においては、一般式 (I-OH) の化合物に対して等モルのQXで表される化合物を用いて行うことが望ましい。この反応は反応に不活性な溶媒、例えばジオキサン、ベンゼン、トルエン、クロロホルム、塩化メチレン、1, 2-ジクロロエタン、テトラヒドロフランなどの溶媒中で行うことが望ましい。反応は円滑に進行する。反応温度は0～60℃が好ましいが、特に好ましくは0℃～室温の範囲内である。

このようにして得られた一般式 (I-Q) で表されるシクロヘキサンジオン誘導体の好ましいものの例を表24に示す。

表 24



一般式 (I) において

$R_1=R_2=R_3=R_4=R_5=R_6=H$  ,  $n=2$

化合物 No.	X	Y	Z	Q
250	-Cl	8-CH <sub>3</sub>		
251	-Cl	8-CH <sub>3</sub>		Et <sub>3</sub> NH <sup>+</sup>

なお、表1～表24におけるYにおいて、例えば8-Fは、フッ素原子がチオクロマン環上の8位に置換されていることを意味している。

本発明の除草剤は、前記一般式(I)で表される本発明のシクロヘキサンジオン誘導体を必須成分として含むものであって、これらの化合物を溶媒などの液状担体又は鉱物質微粉などの固体担体と混合し、水和剤、乳剤、粉剤、粒剤などの形態に製剤化して使用することができる。製剤化に際して乳化性、分散性、展着性などを付与するためには界面活性剤を添加すればよい。

本発明の除草剤を水和剤の形態で用いる場合、通常は本発明のシクロヘキサンジオン誘導体10～55重量%、固体担体40～88重量%及び界面活性剤2～5重量%の割合で配合して組成物を調製し、これを用いればよい。また、乳剤の形態で用いる場合、通常は本発明のシクロヘキサンジオン誘導体20～50重量%、溶剤35～75重量%及び界面活性剤5～15重量%の割合で配合して調製すればよい。

一方、粉剤の形態で用いる場合、通常は本発明のシクロヘキサンジオン誘導体1～15重量%、固体担体80～97重量%及び界面活性剤2～5重量%の割合で配合して調製すればよい。さらに、粒剤の形態で用いる場合は、本発明のシクロヘキサンジオン誘導体1～15重量%、固体担体80～97重量%及び界面活性剤2～5重量%の割合で配合して調製すればよい。ここで固体担体としては鉱物質の微粉が用いられ、この鉱物質の微粉としては、例えばケイソウ土、消石灰などの酸化物、リン灰石などのリン酸塩、セッコウなどの硫酸塩、タルク、パイロフェライト、クレー、カオリン、ベントナイト、酸性白土、ホワイトカーボン、石英粉末、ケイ石粉などのケイ酸塩などを挙げることができる。

また溶剤としては有機溶媒が用いられ、具体的にはベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、o-クロロトルエン、トリクロロエタン、シクロロエチレンなどの塩素化炭化水素、シクロヘキサノール、アミルアルコール、エチレングリコールなどのアルコール、イソホロン、シクロヘキサノン、シクロヘキセニル-シクロヘキサノンなどのケトン、ブチルセロソルブ、ジエチルエーテル、メチルエチルエーテルなどのエーテル、酢酸イソプロピル、酢酸ベンジル、フタル酸メチルなどのエステル、ジメチルホルムアミドなどのアミドあるいはこ



これらの混合物を挙げることができる。

さらに、界面活性剤としては、アニオン型、ノニオン型、カチオン型あるいは両性イオン型（アミノ酸、ペプチンなど）のいずれも用いることができる。

本発明の除草剤には、有効成分として前記一般式（I）で表されるシクロヘキサジオン誘導体と共に、必要に応じ他の除草活性成分を含有させることができる。このような他の除草活性成分としては、従来公知の除草剤、例えばフェノキシ系、ジフェニルエーテル系、トリアジン系、尿素系、カーバメート系、チオカーバメート系、酸アニリド系、ピラゾール系、リン酸系、スルホニルウレア系、オキサジアゾン系などを挙げることができ、これらの除草剤の中から適宜選択して用いることができる。

さらに、本発明の除草剤は必要に応じて殺虫剤、殺菌剤、植物成長調節剤、肥料などと混用することができる。

本発明の除草剤は、畑地用の除草剤として、土壌処理、土壌混和处理、茎葉処理のいずれの処理方法においても使用できる。本発明化合物の対象とする畑地雑草（Cropland weeds）としては、例えばイヌホウズキ（*Solanum nigrum*）、チョウセンアサガオ（*Datura stramonium*）等に代表されるナス科（*Solanaceae*）雑草、イチビ（*Abutilon theophrasti*）、アメリカキンゴジカ（*Sida spinosa*）等に代表されるアオイ科（*Malvaceae*）雑草、アルバアサガオ（*Ipomoea purpurea*）等のアサガオ類（*Ipomoea* spp.）やヒルガオ類（*Calystegia* spp.）に代表されるヒルガオ科（*Convolvulaceae*）雑草、イヌビユ（*Amaranthus lividus*）等に代表されるヒユ科（*Amaranthaceae*）雑草、オナモミ（*Xanthium strumarium*）、ブタクサ（*Ambrosia artemisiaefolia*）、ヒマワリ（*Helianthus annuus*）、ハキダメギク（*Galinsoga ciliata*）、セイヨウトゲアザミ（*Cirsium arvense*）、ノボロギク（*Senecio vulgaris*）、ヒメジョオン（*Erigeron annuus*）等に代表されるキク科（*Compositae*）雑草、イヌガラシ（*Rorippa indica*）、ノハラガラシ（*Sinapis arvensis*）、ナズナ（*Capsella bursa-pastoris*）等に代表されるアブラナ科（*Cruciferae*）雑草、イヌタデ（*Polygonum blumei*）、ソバカズラ（*Polygonum convolvulus*）等に代表されるタデ科（*Polygonaceae*）雑草、スベリヒユ（*Portulaca oleracea*）等に代表されるスベリヒユ科（*Portulacaceae*）雑草、シロザ

(*Chenopodium album*)、コアカザ (*Chenopodium ficifolium*)、ホウキギ (*Kochia scoparia*) 等に代表されるアサガオ科 (*Chenopodiaceae*) 雑草、ハコベ (*Stellaria media*) 等に代表されるナデシコ科 (*Caryophyllaceae*) 雑草、オオイヌノフグリ (*Veronica persica*) 等に代表されるゴマノハグサ科 (*Scrophulariaceae*) 雑草、ツユクサ (*Commelina communis*) 等に代表されるツユクサ科 (*Commelinaceae*) 雑草、ホトケノザ (*Lamium amplexicaule*)、ヒメオドリコソウ (*Lamium purpureum*) 等に代表されるシソ科 (*Labiatae*) 雑草、コニシキソウ (*Euphorbia supina*)、オオニシキソウ (*Euphorbia maculata*) 等に代表されるトウダイグサ科 (*Euphorbiaceae*) 雑草、トゲナシヤエムグラ (*Galium spurium*)、ヤエムグラ (*Galium aparine*)、アカネ (*Rubia akane*) 等に代表されるアカネ科 (*Rubiaceae*) 雑草、スミレ (*Viola arvensis*) 等に代表されるスミレ科 (*Violaceae*) 雑草、アメリカツノクサネム (*Sesbania exaltata*)、エビスグサ (*Cassia obtusifolia*) 等に代表されるマメ科 (*Leguminosae*) 雑草などの広葉雑草 (Broad-leaved weeds)、野生ソルガム (*Sorghum bicolor*)、オオクサキビ (*Panicum dichotomiflorum*)、ジョンソングラス (*Sorghum halepense*)、イヌビエ (*Echinochloa crus-galli*)、メヒシバ (*Digitaria adscendens*)、カラスムギ (*Avena fatua*)、オヒシバ (*Eleusine indica*)、エノコログサ (*Setaria viridis*)、スズメノテッポウ (*Alopecurus aequalis*) 等に代表されるイネ科雑草 (Graminaceous weeds)、ハマスゲ (*Cyperus rotundus*, *Cyperus esculentus*) 等に代表されるカヤツリグサ科雑草 (*Cyperaceous weeds*) 等があげられる。

また、本発明化合物は水田用の除草剤として、湛水下の土壌処理および茎葉処理のいずれの処理においても使用できる。水田雑草 (Paddy weeds) としては、例えば、ヘラオモダカ (*Alisma canaliculatum*)、オモダカ (*Sagittaria trifolia*)、ウリカワ (*Sagittaria pygmaea*) 等に代表されるオモダカ科 (*Alismaceae*) 雑草、タマガヤツリ (*Cyperus difformis*)、ミズカヤツリ (*Cyperus serotinus*)、ホタルイ (*Scirpus juncoides*)、クロダワイ (*Eleocharis kuroguwai*) 等に代表されるカヤツリグサ科 (*Cyperaceae*) 雑草、アゼナ (*Lindenia pyxidaria*) 等に代表されるゴマノハグサ科 (*Scrophulariaceae*) 雑草、コナギ (*Monochoria vaginalis*) 等に代表されるミズアオイ科 (*Potamogetonaceae*) 雑草、ヒ

ルムシロ (*Potamogeton distinctus*) 等に代表されるヒルムシロ科 (*Potamogetonaceae*) 雑草、キカシグサ (*Rotala indica*) 等に代表されるミソハギ科 (*Lythraceae*) 雑草、タイヌビエ (*Echinochloa crus-galli*) 等に代表されるイネ科 (*Gramineae*) 雑草等があげられる。

次に、本発明を製造実施例および除草剤実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

(製造実施例 1)

5-クロロ-8-フルオロ-6-(1', 3'-ジオキソシクロヘキサ-2-イルカルボニル)-4-メトキシイミノチオクロマン-1, 1-ジオキシド (化合物 No. 1)

1-1) 5-クロロ-8-フルオロ-6-カルボキシル-4-メトキシイミノチオクロマン-1, 1-ジオキシドの合成

国際公開 96/30368 号公報に記載の方法に従って、5-クロロ-8-フルオロ-6-カルボキシル-4-メトキシイミノチオクロマン-1, 1-ジオキシドを合成した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  3.35-3.45(m, 2H), 3.63-3.69(m, 2H), 4.08(s, 3H), 7.69(d, 1H)

1-2) 5-クロロ-8-フルオロ-6-(3'-オキソシクロヘキセニル) オキシカルボニル-4-メトキシイミノチオクロマン-1, 1-ジオキシドの合成

5-クロロ-8-フルオロ-6-カルボキシル-4-メトキシイミノチオクロマン-1, 1-ジオキシド 0.50 g (1.6 mmol) をジクロロエタン 3 ml に溶かし、塩化チオニル 0.34 ml (3.0 eq, 4.7 mmol) を加え、3 時間加熱環流した。その後、溶媒を留去することにより、酸クロリドを得た。次いで、1, 3-シクロヘキサンジオン 0.18 g (1.0 eq, 1.6 mmol) のテトラヒドロフラン溶液に、得られた酸クロリドのテトラヒドロフラン溶液を加え、更にトリエチルアミン 0.2 ml (1.0 eq, 1.6 mmol) を滴下した。室温で 2 時間攪拌した後、溶媒を留去し、得られた残渣を酢酸エチルに溶かし、0.2 N 塩酸水溶液、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去した。その後、カラ

ムクロマトグラフィ（酢酸エチル：n-ヘキサン＝1：1）により、5-クロロ-8-フルオロ-6-（3'-オキシシクロヘキセニル）オキシカルボニル-4-メトキシイミノチオクロマン-1，1-ジオキシド 0.21 g（収率58%）を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  2.0-2.7(m, 6H), 3.4-3.5(m, 4H), 4.11(s, 3H), 6.06(bs, 1H), 7.54(d, 1H)

1-3) 5-クロロ-8-フルオロ-6-（1'，3'-ジオキシシクロヘキサ-2-イルカルボニル）-4-メトキシイミノチオクロマン-1，1-ジオキシドの合成

5-クロロ-8-フルオロ-6-（3'-オキシシクロヘキセニル）オキシカルボニル-4-メトキシイミノチオクロマン-1，1-ジオキシド 0.22 g（0.53 mmol）をアセトニトリル4 mlに溶かし、トリエチルアミン0.1 ml（1.0 eq, 0.53 mmol）、アセトンシアニドリン3滴を加え、室温で1日撹拌した。反応終了後、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を抽出し、塩化メチレンで水層を洗浄した。水層を2%塩酸で中和し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去することにより、5-クロロ-8-フルオロ-6-（1'，3'-ジオキシシクロヘキサ-2-イルカルボニル）-4-メトキシイミノチオクロマン-1，1-ジオキシド 0.22 g（収率100%）を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  2.0-2.8(m, 7H), 3.3-3.4(m, 2H), 3.6-3.7(m, 2H), 4.05(s, 3H), 7.32(d, 1H)

IR (KBr) : 2950, 1710, 1680, 1250, 1150  $\text{cm}^{-1}$

（製造実施例2）

5-クロロ-8-フルオロ-6-（1'，3'-ジオキシシクロヘキサ-2-イルカルボニル）-4-（2'-フルオロエトキシ）チオクロマン-1，1-ジオキシド（化合物No. 2）

2-1) 5-クロロ-8-フルオロ-6-カルボキシル-4-（2'-フルオロエトキシ）チオクロマン-1，1-ジオキシドの合成

国際公開96/31507号公報に記載の方法に従って、5-クロロ-8-フ

ルオロ-6-カルボキシル-4-(2'-フルオロエトキシ)チオクロマン-1, 1-ジオキシドを合成した。

$^1\text{H-NMR}$  (アセトン- $d_6$ ) :  $\delta$  2.3-3.2(m, 2H), 3.3-4.5(m, 5H), 4.88(t, 1H), 5.07(m, 1H), 7.79(d, 1H)

mp. 163 - 165°C

2-2) 5-クロロ-8-フルオロ-6-(3'-オキシシクロヘキセニル) オキシカルボニル-4-(2'-フルオロエトキシ)チオクロマン-1, 1-ジオキシドの合成

5-クロロ-8-フルオロ-6-カルボキシル-4-(2'-フルオロエトキシ)チオクロマン-1, 1-ジオキシド 0.47 g (1.4 mmol) をジクロロエタン 3 ml に溶かし、塩化チオニル 0.20 ml (2.0 eq, 2.8 mmol) を加え、40-50°C で3時間攪拌した。その後、溶媒を留去することにより、酸クロリドを得た。次いで、1, 3-シクロヘキサンジオン 0.17 g (1.0 eq, 1.4 mmol) のテトラヒドロフラン溶液に、得られた酸クロリドのテトラヒドロフラン溶液を加え、更にトリエチルアミン 0.2 ml (1.0 eq, 1.6 mmol) を滴下した。室温で2時間攪拌した後、溶媒を留去し、得られた残渣を酢酸エチルに溶かし、0.2 N 塩酸水溶液、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去した。その後、カラムクロマトグラフィ (酢酸エチル : n-ヘキサン = 1 : 1) により、5-クロロ-8-フルオロ-6-(3'-オキシシクロヘキセニル) オキシカルボニル-4-(2'-フルオロエトキシ)チオクロマン-1, 1-ジオキシド 0.50 g (収率 81%) を得た。

$^1\text{H-NMR}$  (CDCl<sub>3</sub>) :  $\delta$  2.0-2.8(m, 8H), 3.0-4.3(m, 4H), 4.85(t, 1H), 4.96(bs, 1H), 6.06(bs, 1H), 7.54(d, 1H)

2-3) 5-クロロ-8-フルオロ-6-(1', 3'-ジオキシシクロヘキサ-2-イルカルボニル)-4-(2'-フルオロエトキシ)チオクロマン-1, 1-ジオキシドの合成

5-クロロ-8-フルオロ-6-(3'-オキシシクロヘキセニル) オキシカルボニル-4-(2'-フルオロエトキシ)チオクロマン-1, 1-ジオキシド

0.50 g (1.1 mmol) をアセトニトリル 3 ml に溶かし、トリエチルアミン 0.15 ml (1.0 eq, 1.1 mmol)、アセトンシアニドリン 3 滴を加え、室温で 1 日攪拌した。反応終了後、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で抽出し、塩化メチレンで水層を洗浄した。水層を 2% 塩酸で中和し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去することにより、5-クロロ-8-フルオロ-6-(1', 3'-ジオキソシクロヘキサ-2-イルカルボニル)-4-(2'-フルオロエトキシ)チオクロマン-1, 1-ジオキシド 0.50 g (収率 100%) を得た。

$^1\text{H-NMR}$  (CDCl<sub>3</sub>) :  $\delta$  1.8-3.4(m, 8H), 3.6-4.4(m, 5H), 4.85(t, 1H), 4.98(bs, 1H), 7.36(d, 1H)

IR (KBr) : 2975, 1690, 1320, 1170 cm<sup>-1</sup>

### (製造実施例 3)

5-クロロ-8-メチル-6-(1', 3'-ジオキソシクロヘキサ-2-イルカルボニル)-4-メトキシチオクロマン-1, 1-ジオキシド (化合物 No. 3)

#### 3-1) 5-クロロ-8-メチル-6-カルボキシル-4-メトキシチオクロマン-1, 1-ジオキシドの合成

国際公開 93/18031 号公報に記載の方法に従って、5-クロロ-8-メチル-6-カルボキシル-4-メトキシチオクロマン-1, 1-ジオキシドを合成した。

$^1\text{H-NMR}$  (アセトン-d<sub>6</sub>) :  $\delta$  2.4-4.0(m, 4H), 2.73(s, 3H), 3.52(s, 3H), 4.85(t, 1H), 7.72(s, 1H)

#### 3-2) 5-クロロ-8-メチル-6-(3'-オキソシクロヘキセニル)オキシカルボニル-4-メトキシチオクロマン-1, 1-ジオキシドの合成

5-クロロ-8-メチル-6-カルボキシル-4-メトキシチオクロマン-1, 1-ジオキシド 0.84 g (2.8 mmol) を t-アミルアルコール 6.7 ml に溶かし、1, 3-シクロヘキサジオン 0.34 g (1.1 eq, 3.0 mmol)、N, N-ジシクロヘキシルカルボジイミド 0.63 g (1.1 eq, 3.0 mmol) を加え、室温で 3 時間攪拌した。その後、溶媒を留去し、酢酸

エチルと水を加え、不溶物をろ過により除去した。有機層は飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去した。その後、カラムクロマトグラフィ（酢酸エチル：n-ヘキサン＝1：1）により、5-クロロ-8-メチル-6-（3'-オキシシクロヘキセニル）オキシカルボニル-4-メトキシチオクロマン-1，1-ジオキシド 0.40 g（収率 36%）を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  2.0-2.8(m, 9H), 2.78(s, 3H), 3.0-3.4(m, 1H), 3.49(s, 3H), 3.6-4.2(m, 1H), 4.81(t, 1H), 6.07(bs, 1H), 7.69(s, 1H)

3-3) 5-クロロ-8-メチル-6-（1', 3'-ジオキシシクロヘキサ-2-イルカルボニル）-4-メトキシチオクロマン-1，1-ジオキシドの合成

5-クロロ-8-メチル-6-（3'-オキシシクロヘキセニル）オキシカルボニル-4-メトキシチオクロマン-1，1-ジオキシド 0.40 g (1.0 mmol) をアセトニトリル 2.4 ml に溶かし、トリエチルアミン 0.14 ml (1.0 eq, 1.0 mmol)、アセトンシアニドリン 3 滴を加え、室温で 8 時間攪拌した。反応終了後、炭酸ナトリウム水溶液で抽出し、酢酸エチルで水層を洗浄した。水層を 5% 塩酸で pH 1 にした後、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去することにより、5-クロロ-8-メチル-6-（1', 3'-ジオキシシクロヘキサ-2-イルカルボニル）-4-メトキシチオクロマン-1，1-ジオキシド 0.26 g（収率 65%）を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  2.0-2.8(m, 9H), 2.80(s, 3H), 3.0-3.4(m, 1H), 3.46(s, 3H), 3.6-4.1(m, 1H), 4.72(t, 1H), 7.06(s, 1H)

IR (KBr) : 2950, 1690, 1300, 1145  $\text{cm}^{-1}$

(製造実施例 4)

5-トリフルオロメチル-3, 3, 8-トリメチル-6-（1', 3'-ジオキシシクロヘキサ-2-イルカルボニル）-チオクロマン-4-オン-1，1-ジオキシド（化合物 No. 4）

4-1) 5-トリフルオロメチル-3, 3, 8-トリメチル-6-カルボキシル-チオクロマン-4-オン-1，1-ジオキシドの合成

国際公開 96/25413 号公報記載の 3, 3, 5, 8-テトラメチル-6-カルボキシル-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシドと同様の方法により、5-トリフルオロメチル-3, 3, 8-トリメチル-6-カルボキシル-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシドを合成した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  1.51(s, 6H), 2.82(s, 3H), 3.61(s, 2H), 7.75(s, 1H)

4-2) 5-トリフルオロメチル-3, 3, 8-トリメチル-6-(3'-オキシソシクロヘキセニル) オキシカルボニルチオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシドの合成

5-トリフルオロメチル-3, 3, 8-トリメチル-6-カルボキシル-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシド 0.40 g (1.1 mmol) をジクロロエタン 3 ml に溶かし、塩化チオニル 0.28 g (2.0 eq, 2.4 mmol) を加え、1.5 時間加熱環流した。その後、溶媒を留去することにより、酸クロリドを得た。次いで、1, 3-シクロヘキサンジオン 0.14 g (1.1 eq, 1.3 mmol) のテトラヒドロフラン溶液に、得られた酸クロリドのテトラヒドロフラン溶液を加え、更にトリエチルアミン 0.13 g (1.1 eq, 1.3 mmol) を滴下した。室温で 2 時間攪拌した後、溶媒を留去し、得られた残渣を酢酸エチルに溶かし、0.2 N 塩酸水溶液、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去することにより、5-トリフルオロメチル-3, 3, 8-トリメチル-6-(3'-オキシソシクロヘキセニル) オキシカルボニルチオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシド 0.29 g (収率 58%) を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  1.52(s, 6H), 2.0-2.8(m, 6H), 2.85(s, 3H), 3.61(s, 2H), 6.09(bs, 1H), 7.73(s, 1H)

4-3) 5-トリフルオロメチル-3, 3, 8-トリメチル-6-(1', 3'-ジオキシソシクロヘキサ-2-イルカルボニル) -チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシドの合成

5-トリフルオロメチル-3, 3, 8-トリメチル-6-(3'-オキシソシ



ロヘキセル) オキシカルボニルチオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシド 0.29 g (0.65 mmol) をアセトニトリル 1.5 ml に溶かし、トリエチルアミン 0.07 g (1.1 eq, 0.69 mmol)、アセトンシアニドリン 3 滴を加え、室温で 1 日撹拌した。反応終了後、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で抽出し、塩化メチレンで水層を洗浄した。水層を 2% 塩酸で中和し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去することにより、5-トリフルオロメチル-3, 3, 8-トリメチル-6-(1', 3'-ジオキソシクロヘキサ-2-イルカルボニル)-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシド 0.15 g (収率 30%) を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  1.51 (s, 6H), 2.0-2.8 (m, 7H), 2.82 (s, 3H), 2.70 (s, 3H), 3.58 (s, 2H), 7.16 (s, 1H)

IR (KBr) : 3000, 1730, 1690, 1300, 1195, 1150  $\text{cm}^{-1}$

(製造実施例 5)

3, 3, 5, 8-テトラメチル-6-(1', 3'-ジオキソシクロヘキサ-2-イルカルボニル)-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシド (化合物 No. 5)

5-1) 3, 3, 5, 8-テトラメチル-6-カルボキシル-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシドの合成

国際公開 96/25413 号公報に記載の方法に従って、3, 3, 5, 8-テトラメチル-6-カルボキシル-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシドを合成した。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  1.47 (s, 6H), 2.58 (s, 3H), 2.76 (s, 3H), 3.53 (s, 2H), 7.93 (s, 1H)

5-2) 3, 3, 5, 8-テトラメチル-6-(3'-オキソシクロヘキセニル) オキシカルボニルチオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシドの合成

3, 3, 5, 8-テトラメチル-6-カルボキシル-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシド 0.70 g (2.4 mmol) をジクロロエタン 4 ml に溶かし、塩化チオニル 0.56 g (2.0 eq, 4.7 mmol) を加え、55

℃で1.5時間攪拌した。その後、溶媒を留去することにより、酸クロリドを得た。次いで、1,3-シクロヘキサジオン0.29g (2.6mmol) のテトラヒドロフラン溶液に、得られた酸クロリドのテトラヒドロフラン溶液を加え、更にトリエチルアミン0.27g (1.1eq, 2.7mmol) を滴下した。室温で2時間攪拌した後、溶媒を留去し、得られた残渣を酢酸エチルに溶かし、0.2N塩酸水溶液、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去することにより、3,3,5,8-テトラメチル-6-(3'-オキシシクロヘキセニル) オキシカルボニルチオクロマン-4-オン-1,1-ジオキシド0.67g (収率68%) を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  1.46(s, 6H), 2.0-2.8(m, 6H), 2.54(s, 3H), 2.76(s, 3H), 3.52(s, 2H), 6.04(bs, 1H), 7.85(s, 1H)

5-3) 3, 3, 5, 8-テトラメチル-6-(1', 3'-ジオキシシクロヘキサ-2-イルカルボニル)-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシドの合成

3, 3, 5, 8-テトラメチル-6-(3'-オキシシクロヘキセニル) オキシカルボニルチオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシド0.63g (1.6mmol) をアセトニトリル3mlに溶かし、トリエチルアミン0.17g (1.1eq, 1.7mmol)、アセトンシアンヒドリン3滴を加え、室温で1日攪拌した。反応終了後、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で抽出し、塩化メチレンで水層を洗浄した。水層を2%塩酸で中和し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去することにより、3, 3, 5, 8-テトラメチル-6-(1', 3'-ジオキシシクロヘキサ-2-イルカルボニル)-チオクロマン-4-オン-1, 1-ジオキシド0.51g (収率81%) を得た。

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ) :  $\delta$  1.45(s, 6H), 2.0-3.0(m, 7H), 2.05(s, 3H), 2.70(s, 3H), 3.51(s, 2H), 7.07(s, 1H)

IR (KBr) : 2975, 1700, 1680, 1260, 1195, 1125  $\text{cm}^{-1}$

以上の製造実施例1~5で用いた出発原料の構造およびNMRスペクトルを表

25に示し、得られた化合物の構造および物性データを表37および表49に示す。

(製造実施例6～55)

表26～表36に記載の化合物を出発原料とし、製造実施例5と同様の方法で表38～表48に記載の化合物を合成した。表50～表60に得られた化合物の物性データを記載する。

(製造実施例56)

5-クロロ-8-メチル-6-(1-アセトキシ-3-オキソシクロヘキセン-2-イル)-4-(2-プロポキシ)チオクロマン-1,1-ジオキシドの合成

製造実施例6で得られた5-クロロ-8-メチル-6-(1,3-ジオキソシクロヘキサン-2-イルカルボニル)-4-(2-プロポキシ)チオクロマン-1,1-ジオキシド(表38の化合物No.15)0.5gを1,2-ジクロロエタン5mlに溶かし、トリエチルアミン0.10gを加えた。その溶液に塩化アセチル0.13gを加え室温で8時間攪拌した。酢酸エチルで薄め、5%塩酸水溶液で2回、飽和重曹溶液で2回、飽和食塩水溶液で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。乾燥剤をろ別、濃縮後、得られたオイルをカラムクロマトにて生成し目的物として、表38に示す化合物No.250を0.30g得た(収率54%)。表60に得られた化合物の物性データを記載する。

(製造実施例57)

5-クロロ-8-メチル-6-(3-オキソシクロヘキセン-2-イル)-4-(2-プロポキシ)チオクロマン-1,1-ジオキシドトリエチルアミン塩の合成

製造実施例6で得られた5-クロロ-8-メチル-6-(1,3-ジオキソシクロヘキサン-2-イル)-4-(2-プロポキシ)チオクロマン-1,1-ジオキシド(表38の化合物No.15)0.5gを1,2-ジクロロエタン5mlに溶かし、トリエチルアミン0.12gを加えた。その溶液を室温で1時間攪拌した。生成した結晶をろ別し、目的物として、表48に示す化合物No.251

を 0.3 g 得た。(収率 65%) 表 60 に得られた化合物の物性データを記載する。

表 25

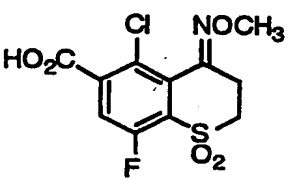
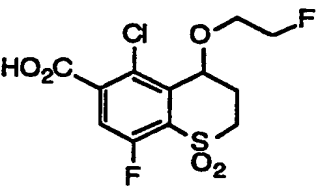
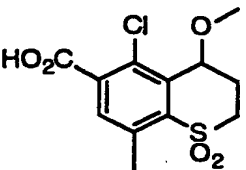
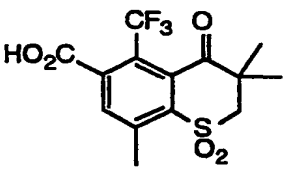
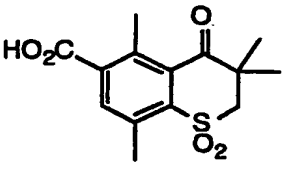
製造実施例 No.	出発原料 式(II)の化合物	NMR (ppm 内部標準: TMS)
1		3.35-3.45(2H,m) 3.63-3.69(2H,m) 4.08(3H,s) 7.69(1H,d) CDCl <sub>3</sub>
2		2.3-3.2(2H,m) 3.3-4.5(5H,m) 4.88(1H,t) 5.07(1H,m) 7.79(1H,d) 重アセトン
3		2.4-4.0(4H,m) 2.73(3H,s) 3.52(3H,s) 4.85(1H,t) 7.72(1H,s) 重アセトン
4		1.51(6H,s) 2.82(3H,s) 3.61(2H,s) 7.75(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
5		1.47(6H,s) 2.58(3H,s) 2.76(3H,s) 3.53(2H,s) 7.93(1H,s) CDCl <sub>3</sub>

表 26

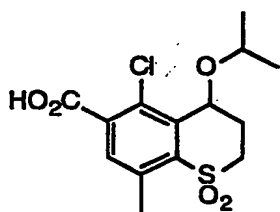
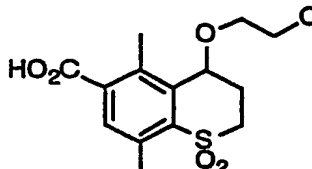
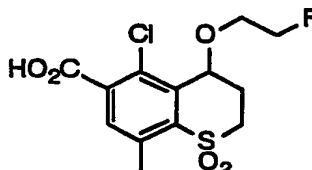
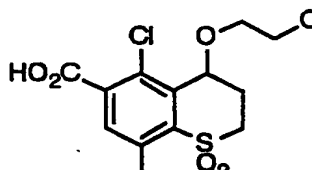
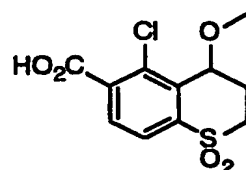
製造実施例 No.	出発原料 式(II)の化合物	NMR (ppm 内部標準: TMS)
6		1.27(6H,d) 2.4-2.8(2H,m) 2.78(3H,s) 3.1-3.4(1H,m) 3.7-4.2(2H,m) 5.15(1H,m) 6.2-6.7(1H,broad) 7.76(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
7		2.3-2.8(2H,m) 2.62(3H,s) 2.78(3H,s) 3.1-3.5(2H,m) 3.5-4.3(5H,m) 5.9-6.4(1H,broad) 7.81(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
8		2.5-4.3(6H,m) 2.73(3H,s) 4.60(2H,dt) 5.06(1H,m) 7.74(1H,s) 重アセトン
9		2.5-2.8(2H,m) 2.79(3H,s) 3.1-3.5(1H,m) 3.5-3.8(2H,m) 3.8-4.2(3H,m) 5.00(1H,m) 6.4-7.1(1H,broad) 7.80((1H,s) CDCl <sub>3</sub>
10		2.3-3.9(4H,m) 3.54(3H,s) 4.86(1H,m) 7.96(2H,ABq) CDCl <sub>3</sub>

表 27

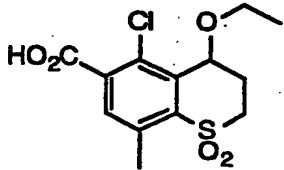
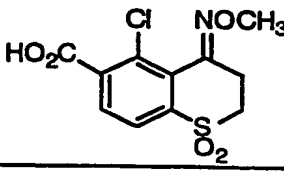
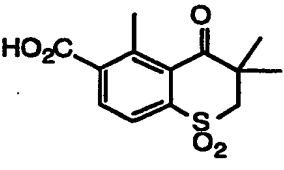
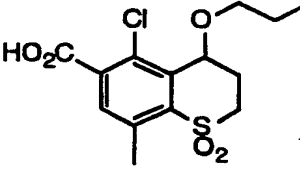
製造実施例 No.	出発原料 式(II)の化合物	NMR (ppm 内部標準: TMS)
11		1.26(3H,t) 2.4-4.3(6H,m) 2.78(3H,s) 4.93(1H,s) 7.3-7.8(1H,broad) 7.70(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
12		3.1-3.6(4H,m) 3.89(3H,s) 7.78(2H,ABq) 重アセトン
13		1.50(6H,s) 2.68(3H,s) 3.49(2H,s) 7.90(1H,d) 8.22(1H,d) CDCl <sub>3</sub>
14		0.93(3H,t) 1.4-1.8(2H,m) 2.3-4.0(6H,m) 2.73(3H,s) 4.96(1H,m) 7.71(1H,s) 重アセトン

表 28

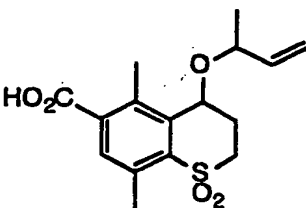
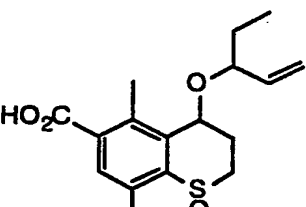
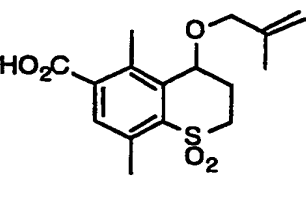
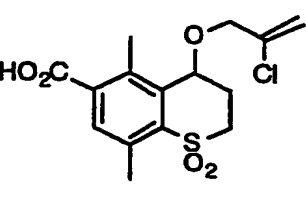
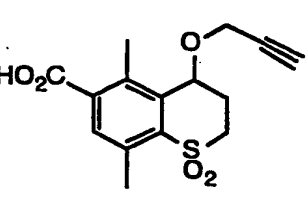
製造実施例 No.	出発原料 式(II)の化合物	NMR (ppm 内部標準 : TMS)
15		1.31(3H,d) 2.43-2.90(2H,m) 2.57(3H,s) 2.77(3H,s) 3.10-3.40(1H,m) 3.70-4.30(2H,m) 4.77-4.97(1H,m) 5.10-5.45(2H,m) 5.66-6.15(1H,m) 7.78(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
16		0.48-1.80(5H,m) 2.20-2.70(1H,m) 2.51(3H,s) 2.70(3H,s) 2.90-4.40(4H,m) 4.60-4.80(1H,m) 4.90-6.20(3H,m) 7.72(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
17		1.67(3H,s) 2.20-2.90(1H,m) 2.49(3H,s) 2.67(3H,s) 3.00-3.36(1H,m) 3.37-4.02(4H,m) 4.52-4.72(1H,m) 4.82(1H,s) 4.90(1H,s) 7.66(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
18		2.60-2.74(1H,m) 2.61(3H,s) 2.77(3H,s) 3.10-3.40(1H,m) 3.70-4.15(2H,m) 4.19(2H,s) 4.70-4.90(1H,m) 5.40(1H,s) 5.50(1H,s) 7.80(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
19		2.57(1H,t) 2.41-3.10(1H,m) 2.65(3H,s) 2.77(3H,s) 3.18-3.35(1H,m) 3.70-4.18(2H,m) 4.33(2H,d) 4.91-5.11(1H,m) 7.81(1H,s) CDCl <sub>3</sub>



表 29

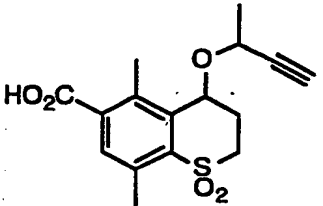
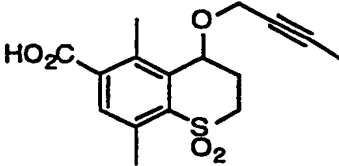
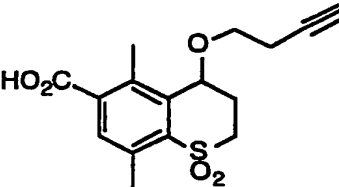
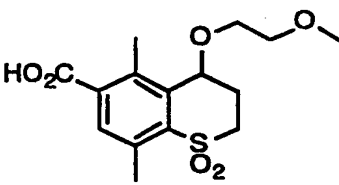
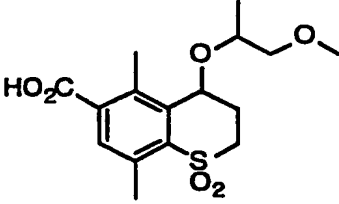
製造実施例 No.	出発原料 式 (II) の化合物	NMR (ppm 内部標準 : TMS)
20	 <p>7:3 ジアステレオマー 混合物</p>	1.49(3H,d) 2.30-2.95(2H,m) 2.55(1H,d) 2.59(0.9H,s) 2.68(2.1H,s) 2.76(3H,s) 3.05-3.40(1H,m) 3.55-4.55(2H,m) 4.80-4.95(0.3H,m) 5.15-5.25(0.7H,m) 7.78(1H,s)
21		1.87(3H,t) 2.25-3.48(2H,m) 2.60(3H,s) 2.70(3H,s) 3.60-4.20(2H,m) 4.38(2H,d) 4.96-5.16(1H,m) 7.69(1H,s)
22		1.90-3.10(4H,m) 2.59(3H,s) 2.71(3H,s) 3.17-3.32(1H,m) 3.67-4.23(4H,m) 4.77-4.97(1H,m) 7.70(1H,s)
23		2.03-4.14(4H,m) 2.61(3H,s) 2.76(3H,s) 3.38(3H,s) 3.43-3.78(4H,m) 4.61-4.81(1H,m) 7.76(1H,s)
24	 <p>1:1 ジアステレオマー 混合物</p>	1.18(1.5H,d) 1.25(1.5H,d) 2.35-2.90(2H,m) 2.61(1.5H,s) 2.65(1.5H,s) 2.71(3H,s) 2.95-3.70(3H,m) 3.32 (1.5H,s) 3.33(1.5H,s) 3.80-4.20(2H,m) 5.00-5.12(0.5H,m) 5.15-5.26(0.5H,m) 7.68(1H,s)

表 30

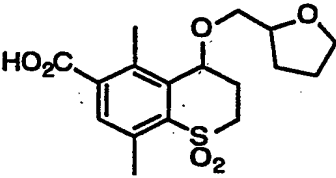
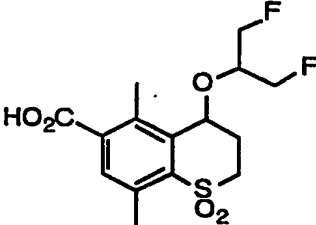
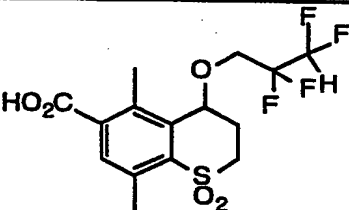
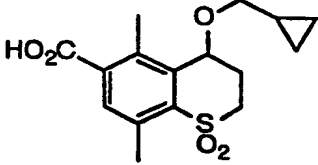
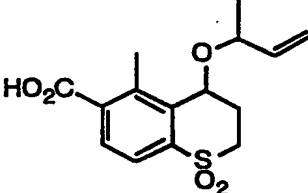
製造実施例 No.	出発原料 式(II)の化合物	NMR (ppm 内部標準: TMS)
25		1.50-2.20(4H,m) 2.25-2.95(2H,m) 2.59(3H,s) 2.74(3H,s) 3.10-3.35(1H,m) 3.40-4.20(6H,m) 4.60-4.88(1H,m) 7.73(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
26		2.5-2.9(2H,m) 2.65(3H,s) 2.78(3H,s) 3.1-3.4(1H,m) 3.8-4.5(4H,m) 4.7-4.9(2H,m) 5.0-5.2(1H,m) 7.81(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
27		2.58(3H,s) 2.78(3H,s) 2.5-2.9(2H,m) 3.1-3.4(1H,m) 3.6-4.2(3H,m) 4.75-4.98(1H,m) 5.88(1H,tt) 7.85(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
28		0.15-0.35(2H,m) 0.45-0.70(2H,m) 0.85-1.25(1H,m) 2.30-2.80(2H,m) 2.60(3H,s) 2.76(3H,s) 3.10-3.55(3H,m) 3.70-3.95(1H,m) 4.58-4.78(1H,m) 7.78(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
29	 1:1 ジアステレオマー 混合物	1.30(1.5H,d) 1.73(1.5H,d) 2.63(1.5H,s) 2.65(1.5H,s) 2.77-3.00(1H,m) 3.10-3.30(1H,m) 3.63-4.32(3H,m) 4.74-4.82(0.5H,m) 4.86-4.96(0.5H,m) 5.10-5.36(2H,m) 5.60-6.05(1H,m) 7.85(1H,d) 8.08(1H,d) CDCl <sub>3</sub>

表 31

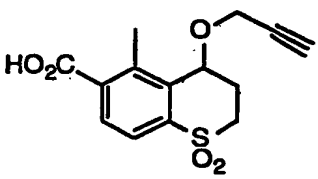
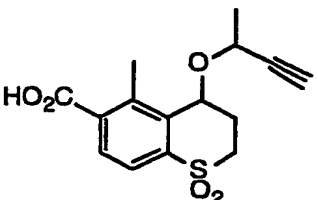
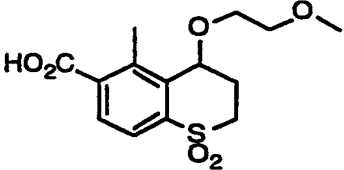
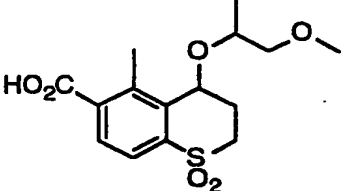
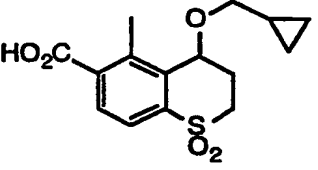
製造実施例 No.	出発原料 式 (II) の化合物	NMR (ppm 内部標準 : TMS)
30		2.53-3.10(2H,m) 2.74(3H,s) 3.15-3.50(1H,m) 3.60-4.30(2H,m) 4.36(2H,d) 4.94-5.12(1H,m) 7.94(1H,d) 8.05(1H,d) CDCl <sub>3</sub>
31		1.49(3H,d) 2.31-4.52(9H,m) 4.78-5.32(1H,m) 7.86(1H,d) 8.55(1H,d) CDCl <sub>3</sub>
32		2.74(3H,s) 2.80-3.15(2H,m) 3.32(3H,s) 3.25-4.20(6H,m) 4.81-5.00(1H,m) 7.78(1H,d) 7.97 (1H,d) CDCl <sub>3</sub>
33	 1:1 ジアステレオマー 混合物	1.05(1.5H,d) 1.17(1.5H,d) 2.25-2.70(1H,m) 2.66(1.5H,s) 2.70(1.5H,s) 2.85-4.21(6H,m) 3.31(1.5H,s) 3.40(1.5H,s) 5.00-5.10(0.5H,m) 5.13-5.23(0.5H,m) 7.78(1H,d) 7.94(1H,d) CDCl <sub>3</sub>
34		0.15-0.32(3H,m) 0.44-0.68(2H,m) 1.10-1.34(1H,m) 1.90-2.75(3H,m) 2.32(3H,m) 3.10-4.30(3H,m) 4.60-4.80(1H,m) 7.20(1H,d) 7.82(1H,d) CDCl <sub>3</sub>

表 32

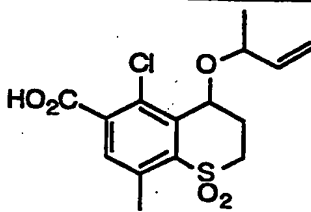
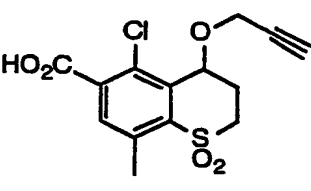
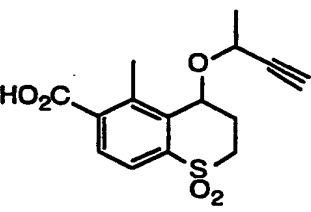
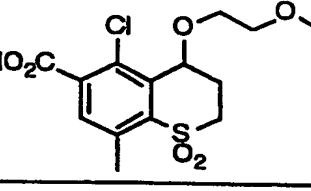
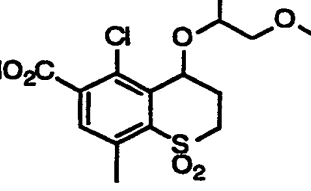
製造実施例 No.	出発原料 式(II)の化合物	NMR (ppm 内部標準 : TMS)
35	 <p>1:1 ジアステレオマー 混合物</p>	1.27(1.5H,d) 1.34(1.5H,d) 2.35-2.74(2H,m) 2.77(3H,s) 3.18-3.42(1H,m) 3.85-4.40(2H,m) 5.12-6.10(4H,m) 7.75(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
36		2.32-2.96(1H,m) 3.08(1H,t) 3.26-4.24(3H,m) 4.48(2H,d) 5.16-5.36(1H,m) 7.74(1H,s) 重アセトン
37		1.49(3H,t) 2.31-4.52(9H,m) 4.78-5.32(1H,m) 8.86(1H,d) 8.55(1H,d) 重アセトン
38		2.40-2.80(2H,m) 2.75(3H,s) 3.10-3.35(1H,m) 3.39(3H,s) 3.55-4.20(5H,m) 4.86-5.06(1H,m) 7.71(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
39	 <p>1:1 ジアステレオマー 混合物</p>	1.22(1.5H,d) 1.29(1.5H,d) 2.45-2.90(1H,m) 2.78(3H,s) 3.10-3.73(4H,m) 3.36(3H,s) 3.80-4.35(2H,m) 5.04-5.22(0.5H,m) 5.25-5.43(0.5H,m) 7.74(1H,s) CDCl <sub>3</sub>

表 33

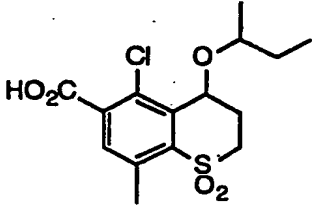
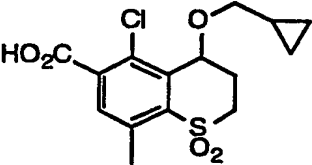
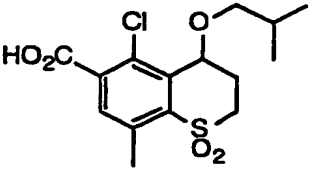
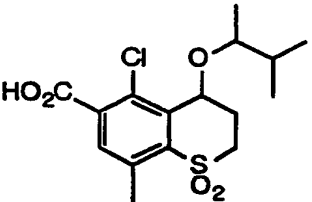
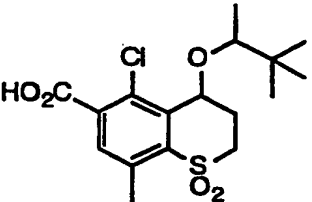
製造実施例 No.	出発原料 式 (II) の化合物	NMR (ppm 内部標準: TMS)
40		0.86(3H,t) 1.28(3H,d) 1.37-1.66(2H,m) 2.35-2.90(2H,m) 2.78(3H,s) 3.12-3.47(1H,m) 3.53-3.94(1H,m) 3.98-4.26(1H,m) 5.09-5.27(1H,m) 7.76(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
41		0.14-0.41(2H,m) 0.42-0.73(2H,m) 0.90-1.30(1H,m) 2.43-3.90(2H,m) 2.77(3H,s) 3.11-3.40(1H,m) 3.49(2H,d) 3.75-4.08(1H,m) 4.81-5.00(1H,m) 7.75(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
42		0.92(6H,d) 1.66-2.15(1H,m) 2.42-2.97(2H,m) 2.78(3H,s) 3.14-3.69(1H,m) 3.41(2H,d) 3.75-4.17(1H,m) 4.79-5.00(1H,m) 7.76(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
43	 1:1 ジアステレオマー 混合物	0.79(3H,d) 0.90(3H,d) 1.16(1.5H,d) 1.18(1.5H,d) 1.63-2.06(1H,m) 2.43-2.98(2H,m) 2.78(3H,s) 3.19-3.78(2H,m) 3.82-4.30(1H,m) 5.11-5.21(1H,m) 7.76(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
44	 2:1 ジアステレオマー 混合物	0.73(6H,s) 0.89(3H,s) 1.36(3H,d) 2.40-2.60(2H,m) 2.78(3H,s) 3.20-3.60(1H,m) 3.46(1H,d) 3.70-4.40(1H,m) 5.20-5.40(1H,m) 7.76(1H,s) CDCl <sub>3</sub>

表 34

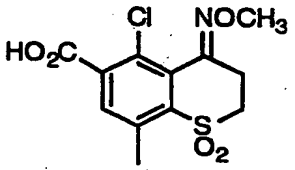
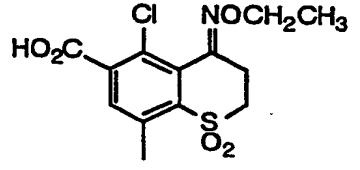
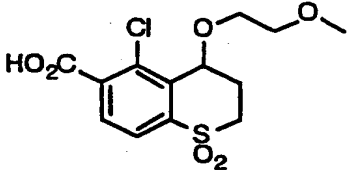
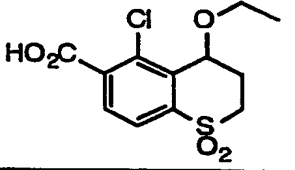
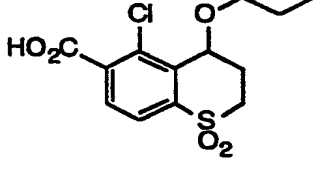
製造実施例 No.	出発原料 式 (II) の化合物	NMR (ppm 内部標準: TMS)
45		2.70(3H,s) 3.15-3.40(2H,m) 3.54-3.86(2H,m) 4.10(3H,s)    7.65(1H,s) 重アセトン
46		1.35(3H,t) 2.74(3H,s) 3.10-3.75(4H,m) 4.32(2H,q) 7.66(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
47		2.30-4.15(8H,m)    3.32(3H,s) 4.92-5.12(1H,m) 7.90(1H,d) 8.01(1H,d) 重アセトン
48		1.19(3H,t) 2.5-2.9(2H,m) 3.4-3.9(4H,m)    4.88-5.08(1H,m) 7.94 (1H,d)    7.96(1H,d) 重アセトン
49		0.91(3H,t)    1.4-1.8(2H,m) 2.3-3.1(2H,m) 3.2-3.9(4H,m) 4.85-5.05(1H,m) 7.95(1H,d)    7.97(1H,d) 重アセトン

表 35

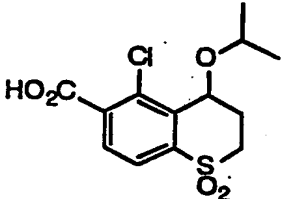
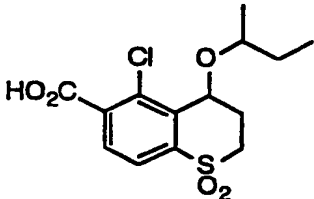
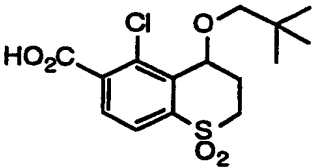
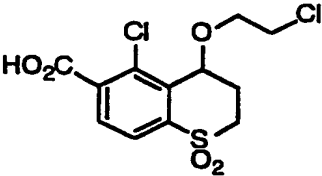
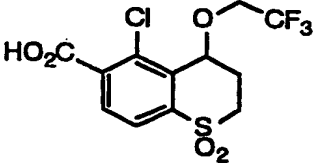
製造実施例 No.	出発原料 式(II)の化合物	NMR (ppm 内部標準: TMS)
50	 1:1 ジアステレオマー 混合物	1.21(3H,d) 1.27(3H,d) 2.3-3.6(3H,m) 3.73(1H,dd) 4.06(1H,dq) 5.09-5.26(1H,m) 7.87(1H,d) 8.12(1H,d)  重アセトン
51		0.87(3H,t) 1.27(3H,d) 1.47-1.75(2H,m) 2.36-3.55(4H,m) 3.62-4.07(1H,m) 5.13-5.33(1H,m) 7.91(1H,d) 7.99(1H,d)  CDCl <sub>3</sub>
52		0.92(9H,s) 2.50-2.90(2H,m) 3.10-3.80(4H,m) 4.85-5.05(1H,m) 7.97(2H,s)  重アセトン
53		2.42-2.87(2H,m) 3.16-3.47(1H,m) 3.53-3.74(2H,m) 3.82-4.22(3H,m) 4.88-5.08(1H,m) 7.94(1H,d) 8.08(1H,d)  CDCl <sub>3</sub>
54		2.5-2.9(2H,m) 3.0-3.9(2H,m) 4.0-4.6(2H,m) 5.16-5.36(1H,m) 8.02(2H,s)  重アセトン

表 36

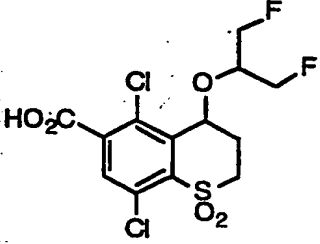
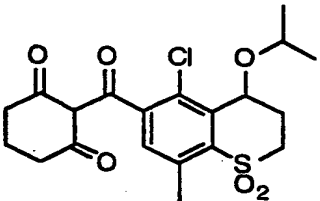
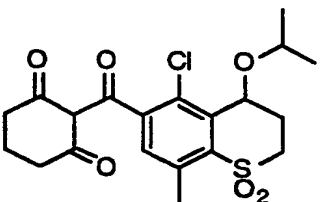
製造実施例 No.	出発原料 式(II)の化合物	NMR (ppm 内部標準 : TMS)
55		2.4-3.1(2H,m) 3.1-4.0(2H,m) 4.0-4.7(3H,m) 4.8-5.2(2H,m) 5.26-5.46(1H,m) 7.26(1H,s) 重アセトン
56		1.22(6H,d) 1.9-2.2(2H,m) 2.3-2.9(6H,m) 2.73(3H,s) 3.1-3.4(1H,m) 3.7-4.3(2H,m) 5.02(1H,m) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>
57		1.22(6H,d) 1.9-2.2(2H,m) 2.3-2.9(6H,m) 2.73(3H,s) 3.1-3.4(1H,m) 3.7-4.3(2H,m) 5.02(1H,m) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>



表 37

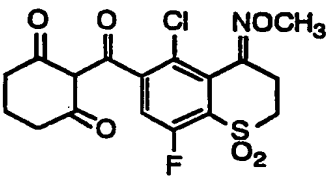
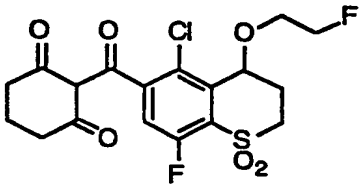
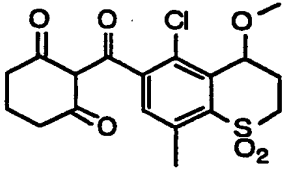
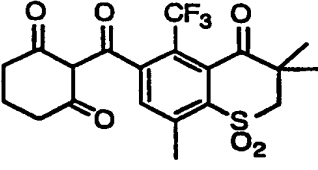
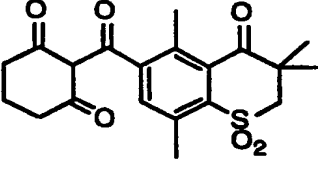
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
1	1		58
2	2		81
3	3		23
4	4		17
5	5		55

表 38

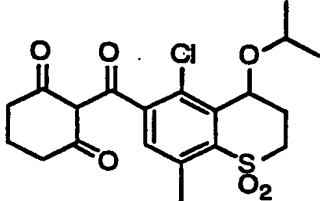
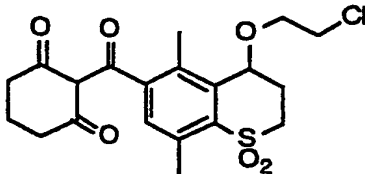
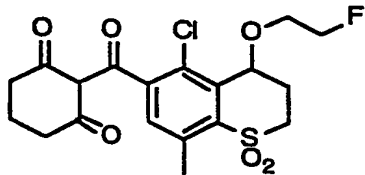
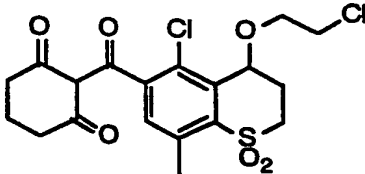
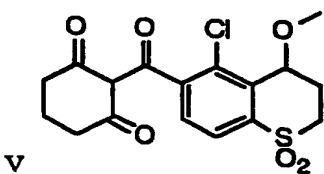
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
6	15		62
7	98		86
8	104		98
9	108		60
10	6	 v	64

表 39

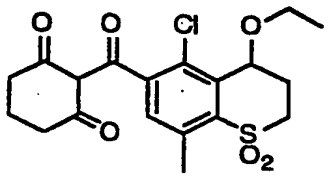
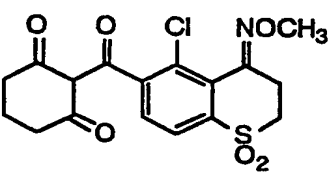
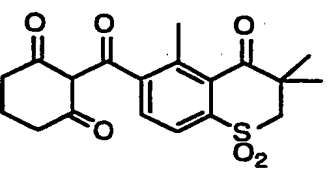
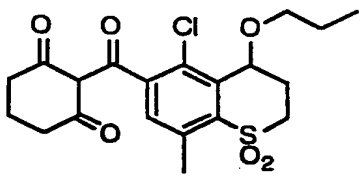
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
11	13		63
12	165		42
13	202		83
14	14		62

表 40

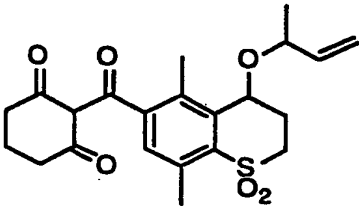
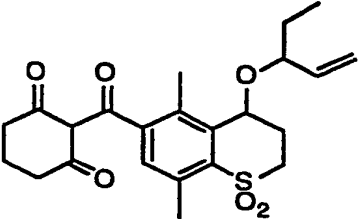
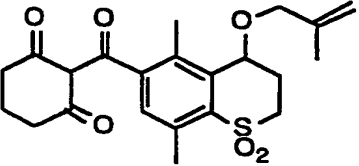
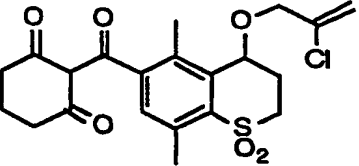
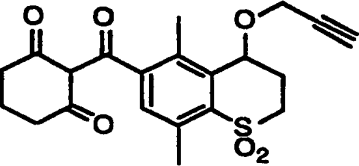
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
15	216		72
16	238		61
17	217		43
18	218		73
19	219		53

表 41

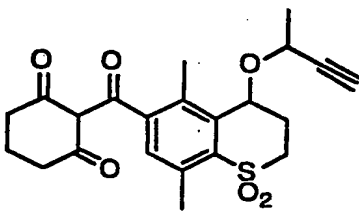
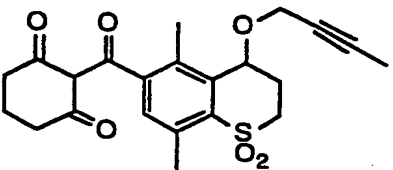
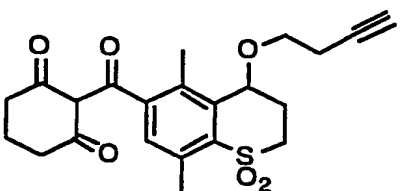
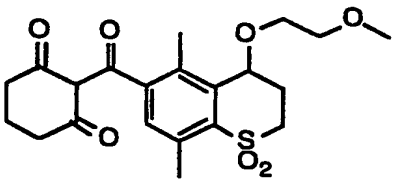
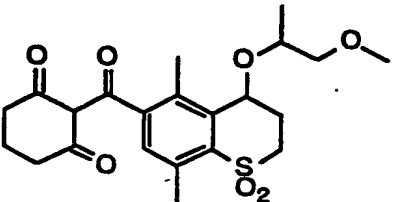
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
20	220		85
21	221		52
22	222		60
23	223		25
24	224		83

表 42

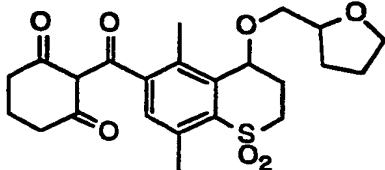
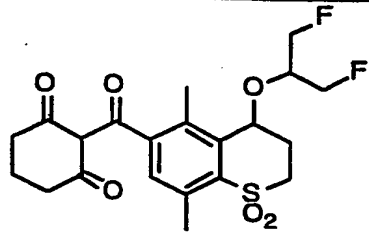
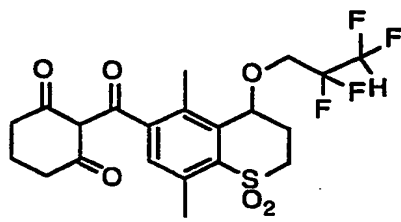
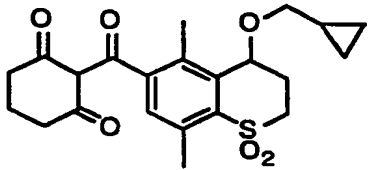
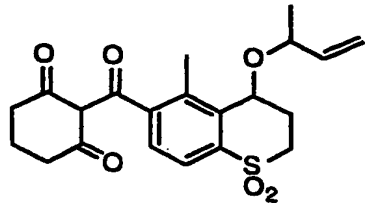
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
25	239		76
26	225		78
27	226		62
28	240		82
29	227		7

表 43

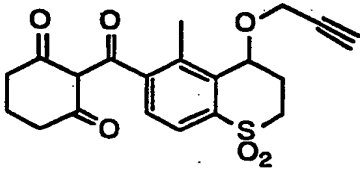
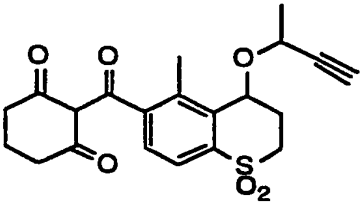
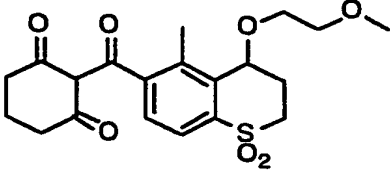
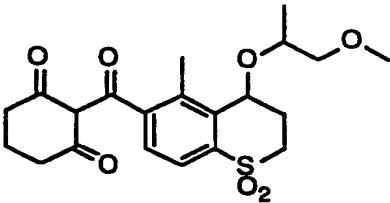
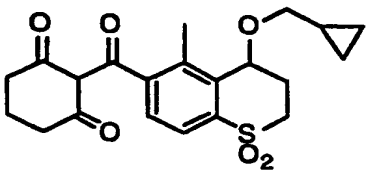
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
30	228		78
31	229		36
32	230		56
33	231		93
34	241		75

表 44

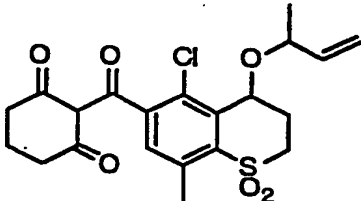
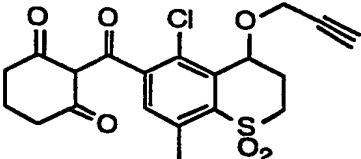
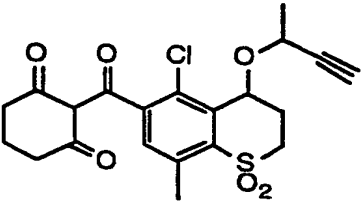
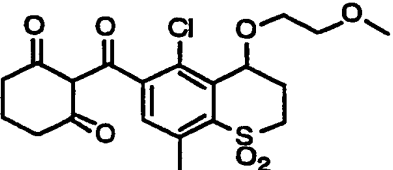
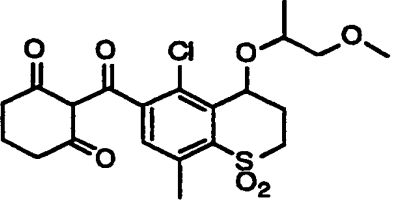
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
35	232		91
36	233		90
37	234		7
38	235		49
39	236		92



表 45

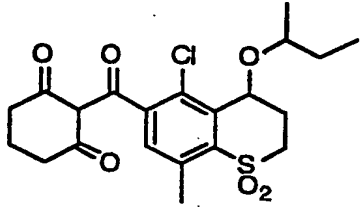
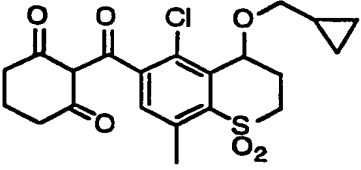
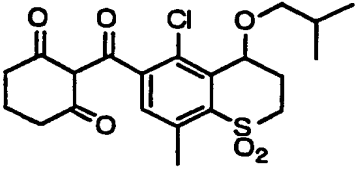
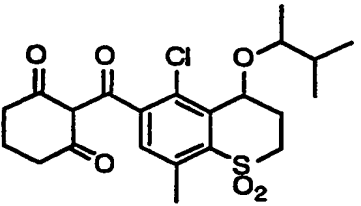
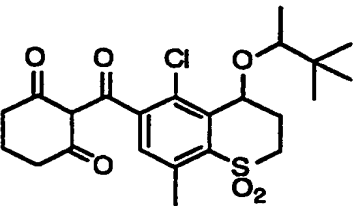
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
40	16		38
41	242		6
42	17		95
43	243		94
44	244		84

表 46

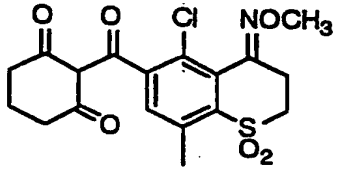
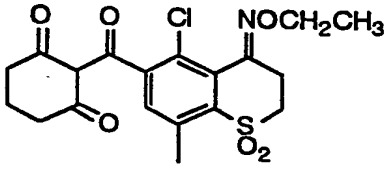
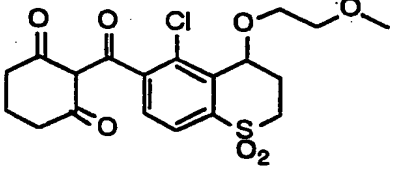
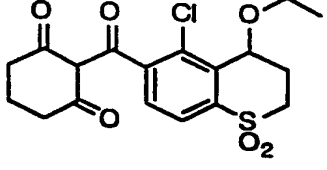
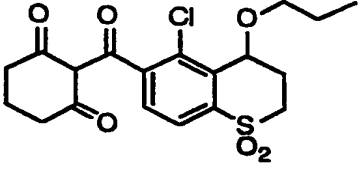
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
45	168		58
46	169		66
47	237		9
48	7		58
49	8		64

表 47

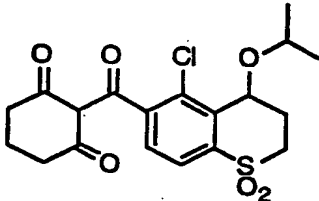
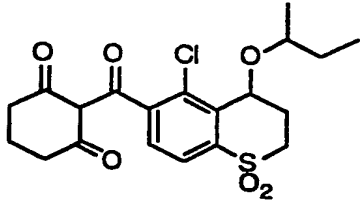
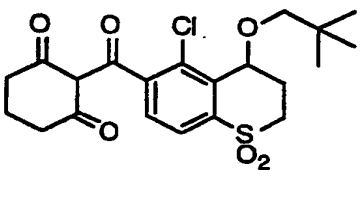
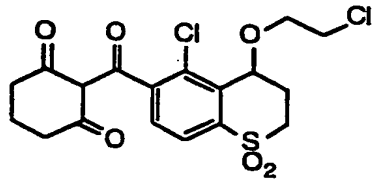
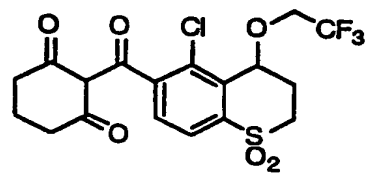
製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
50	9		70
51	10		43
52	245		39
53	154		20
54	152		30

表 48

製造実施例 No.	化合物 No.	得られた化合物	収率 (%)
55	246		30
56	250		54
57	251		65

表 49

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) ( $\text{cm}^{-1}$ )
1	1	2.0-2.7(6H,m) 3.4-3.5(4H,m) 4.11(3H,s) 6.06(1H,broad) 7.54(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	2950,1710,1680 1250,1150
2	2	1.8-3.4(8H,m) 3.6-4.4(5H,m) 4.85(1H,t) 4.98(1H,broad) 7.36(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	2975,1690,1320 1170
3	3	2.0-2.8(9H,m) 2.80(3H,s) 3.0-3.4(1H,m) 3.46(3H,s) 3.6-4.1(1H,m) 4.72(1H,t) 7.06(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2950,1690,1300 1145
4	4	1.51(6H,s) 2.0-2.8(7H,m) 2.82(3H,s) 2.70(3H,s) 3.58(2H,s) 7.16(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3000,1730,1690 1300,1195,1150
5	5	1.45(6H,s) 2.0-3.0(7H,m) 2.05(3H,s) 2.70(3H,s) 3.51(2H,s) 7.07(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2975,1700,1680 1260,1195,1125

表 50

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
6	15	1.22(6H,d) 1.9-2.2(2H,m) 2.3-2.9(6H,m) 2.73(3H,s) 3.1-3.4(1H,m) 3.7-4.3(2H,m) 5.02(1H,m) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	1740,1690,1310, 1130
7	98	1.9-2.2(2H,m) 2.23(3H,s) 2.3-4.1(12H,m) 2.71(3H,s) 4.67(1H,m) 6.96(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	1750,1690,1300 1140
8	104	1.9-2.2(2H,m) 2.3-4.2(10H,m) 4.55(2H,m) 4.91(1H,m) 7.07(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	1680,1330,1290 1140
9	108	1.9-2.2(2H,m) 2.3-4.3(12H,m) 2.74(3H,s) 4.90(1H,s) 7.07(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	1680,1290,1120
10	6	1.9-2.2(2H,m) 2.3-3.9(8H,m) 3.49(3H,s) 4.79(1H,m) 7.48(1H,d) 7.87(1H,d) 重アセトン	1680,1300,1140

表 51

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
11	13	1.22(3H,t) 1.9-2.3(2H,m) 2.3-4.2(10H,m) 2.73(3H,s) 4.82(1H,m) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	1680,1310,1130
12	165	1.9-2.2(2H,m) 2.3-2.6(2H,m) 2.7-3.1(2H,m) 3.3-3.7(4H,m) 4.05(3H,s) 7.46(1H,d) 7.93(1H,d) 重アセトン	1740,1690,1310 1160
13	202	1.48(6H,s) 1.9-2.2(2H,m) 2.35(3H,s) 2.3-2.5(2H,m) 2.7-2.9(2H,m) 3.48(2H,s) 7.32(1H,d) 7.85(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	1750,1690,1310, 1140
14	14	0.91(3H,t) 1.4-1.8(2H,m) 1.9-4.2(12H,m) 2.72(3H,s) 4.80(1H,s) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	1690,1300,1140

表 52

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
15	216	1.27(3H,d) 1.90-2.90(8H,m) 2.20(3H,s) 2.75(3H,s) 3.10-3.35(1H,m) 3.70-4.20(2H,m) 4.68-4.88(1H,m) 5.10-5.36(2H,m) 5.60-6.10(1H,m) 6.93(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3450,2980,1680 1550,1440,1300 1280,1120,1060 920,750,590
16	238	0.89(3H,t) 1.40-1.80(2H,m) 1.90-3.08(8H,m) 2.21(3H,s) 2.65(3H,s) 3.10-3.40(1H,m) 3.58-4.18(2H,m) 4.80-5.00(1H,m) 5.10-6.10(3H,m) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3550,3100,2950 1680,1600,1400 1300,1130
17	217	1.75(3H,s) 2.20(3H,s) 2.61(3H,s) 2.80-3.48(8H,m) 3.51-4.33(4H,m) 4.70-4.95(2H,m) 4.89-5.15(1H,m) 6.94(1H,s) 重アセトン	3500,3190,2950 1580,1400,1280, 1120
18	218	2.11-2.87(7H,m) 2.22(3H,s) 2.77(3H,s) 3.10-3.40(1H,s) 3.70-4.10(2H,m) 4.14(2H,s) 4.62-4.82(1H,m) 5.37(1H,s) 5.51(1H,s) 6.97(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2950,1680,1550 1410,1310,1280 1190,1120,920 750,590,550
19	219	1.90-2.90(8H,m) 2.27(3H,s) 2.71(3H,s) 3.05-3.45(1H,m) 3.65-4.34(2H,m) 4.29(2H,d) 4.86-5.05(1H,m) 6.96(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3450,3290,2950 1680,1550,1440 1310,1120,1060 920,790,750,590



表 53

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
20	220	1.48(3H,d) 1.90-2.95(6H,m) 2.04(2H,t) 2.22(0.9H,s) 2.31(2.1H,s) 2.53(1H,d) 2.71(3H,s) 3.10-3.35(1H,m) 3.55-4.50(2H,m) 4.75-4.95(0.3H,m) 5.05-5.20(0.7H,m) 6.95(1H,s) 7:3 ジアステレオマー混合物 CDCl <sub>3</sub>	3300,3275,3000 2945,2900,1680 1590,1440,1410 1300,1280,1190 1120,1090,1050
21	221	1.87(3H,t) 1.90-2.90(7H,m) 2.26(3H,s) 2.70(3H,s) 3.05-3.35(1H,m) 3.65-4.35(2H,m) 4.35(2H,d) 4.82-5.00(1H,m) 6.93(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3460,2960,1740 1690,1595,1450 1390,1310,1290 1250,1195,1130 1060,920,760
22	222	1.90-2.95(10H,m) 2.23(3H,s) 2.71(3H,s) 3.05-3.35(1H,m) 3.40-4.25(4H,m) 4.54-4.74(1H,m) 6.95(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3390,2950,1730 1680,1565,1440 1310,1290,1120 1080,920,750
23	223	1.53(8H,m) 2.24(3H,s) 2.71(3H,s) 3.10-3.30(1H,m) 3.36(3H,s) 3.51-3.93(5H,m) 4.54-4.74(1H,m) 6.94(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2940,1670,1540 1440,1410,1300 1280,1180,1120 1070,910,740
24	224	1.18(1.5H,d) 1.21(1.5H,d) 1.70-2.20(3H,m) 2.25-2.55(2H,m) 2.26(1.5H,s) 2.31(1.5H,s) 2.60-2.90(3H,m) 2.72(3H,s) 3.00-3.60(3H,m) 3.31(1.5H,s) 3.34(1.5H,s) 3.70-4.30(2H,m) 4.70-4.90(0.5H,m) 5.00-5.15(0.5H,m) 6.93(1H,s) 1:1 ジアステレオマー混合物 CDCl <sub>3</sub>	2950,1680,1570 1560,1300,1280 1120,1045,920 750

表 54

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
25	239	1.50-2.90(12H,m) 2.23(3H,s) 2.71(3H,s) 3.05-3.30(1H,m) 3.40-4.20(6H,m) 4.50-4.70(1H,m) 6.94(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2950,2880,1785 1560,1310,1290 1190,1125,1075 920,760,600,550
26	225	1.9-2.9(8H,m) 2.28(3H,s) 3.1-3.4(1H,m) 3.8-4.4(4H,m) 3.5-4.2(3H,m) 4.7-4.9(1H,m) 5.93(1H,t) 6.99(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2980,1740,4680 1560,1420,1310 1290,1190,1130 1050,920,790 760
27	226	1.9-2.9(8H,m) 2.19(3H,s) 2.72(3H,s) 3.1-3.4(1H,m) 3.5-4.2(3H,m) 4.7-4.9(1H,m) 5.93(1H,t) 6.99(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2950,1730,1680 1560,1410,1310 1290,1240,1190 1120,1100,920 840,790,760
28	240	0.10-0.30(2H,m) 0.45-0.65(2H,m) 0.90-1.25(1H,m) 1.90-2.90(8H,m) 2.23(3H,s) 2.70(3H,s) 3.05-3.60(3H,m) 3.65-4.05(1H,m) 4.50-4.67(1H,m) 6.93(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2980,1690,1560 1420,1320,1300 1200,1140,1080 935,765,600 560
29	227	1.2-1.4(3H,d) 1.8-2.9(10H,m) 3.1-3.4(1H,m) 3.6-4.2(3H,m) 4.6-4.9(1H,m) 5.0-5.9(3H,m) 7.16(1H,d) 7.80(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	2970,1590,1400, 1315,1295,1200, 1130

表 55

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
30	228	1.90-2.90(8H,m) 2.32(3H,s) 3.10-3.40(1H,m) 3.60-4.20(2H,m) 4.31(2H,d) 4.88-5.08(1H,m) 7.21(1H,d) 7.81(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3370,2950,1680 1550,1410,1310 1280,1180,1120 1060,750
31	229	1.47(3H,d) 1.85-2.90(8H,m) 2.25(3H,s) 3.05-4.40(4H,m) 4.80-5.00(0.5H,m) 5.10-5.30(0.5H,m) 7.21(1H,d) 7.83(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3280,2950,1680 1550,1420,1300 1290,1190,1120 1090,1050,910 750,590
32	230	2.00-3.10(8H,m) 2.30(3H,s) 3.10-3.30(1H,m) 3.30(3H,s) 3.42-3.95(5H,m) 4.73-4.93(1H,m) 7.31(1H,d) 7.70(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3450,2900,1680 1550,1430,1280 1130,1080
33	231	1.14-1.26(3H,m) 1.90-3.65(14H,m) 3.32(3H,s) 3.72-4.10(2H,m) 4.75-4.95(0.5H,m) 5.00-5.20(0.5H,m) 7.19(1H,d) 7.80(1H,d) 1:1 ジアステレオマー混合物 CDCl <sub>3</sub>	3480,2950,1730 1670,1410,1300 1190,1120,1040 970,910,750 600,550
34	241	0.15-0.32(2H,m) 0.44-0.68(2H,m) 1.10-1.34(1H,m) 1.90-2.80(9H,m) 2.30(3H,s) 3.10-4.30(3H,m) 4.55-4.75(1H,m) 7.20(1H,d) 7.82(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	2960,1730,1610 1410,1290,1190 1120,1050,910 800,750

表 56

製造実施例 NO.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
35	232	1.24(1.5H,d) 1.28(1.5H,d) 1.90-2.90(8H,m) 2.79(3H,s) 3.10-3.40(1H,m) 3.70-4.35(2H,m) 4.95-5.40(3H,m) 5.60-6.15(1H,m) 7.05(1H,s) 1:1 ジアステレオマー混合物 CDCl <sub>3</sub>	3020,2980,1690 1580,1320,1300 1150,1080,930 760
36	233	2.00-2.95(8H,m) 2.73(3H,s) 3.15-3.35(1H,m) 3.83-4.40(2H,m) 4.34(2H,d) 5.00-5.20(1H,m) 7.07(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3380,2960,1740 1680,1570,1420 1310,1290,1130 1060,910,740 590
37	234	1.43(1.5H,d) 1.48(1.5H,d) 1.8-2.2(4H,m) 2.3-2.8(6H,m) 2.71(3H,s) 3.0-3.4(1H,m) 3.6-4.1(1H,m) 5.02-5.15(0.5H,m) 5.35-5.45(0.5H,m) 7.07(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2980,1600,1400 1320,1300,1145 1110,1070,920 750
38	235	1.95-2.70(8H,m) 2.73(3H,s) 3.00-4.20(6H,m) 3.35(3H,s) 4.77-4.97(1H,m) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3460,2940,1680 1410,1290,1130 1070,910,740 590,550
39	236	1.20(1.5H,d) 1.23(1.5H,d) 1.80-2.86(7H,m) 2.73(3H,s) 2.90-3.68(4H,m) 3.34(3H,s) 3.76-4.42(2H,m) 5.00-5.15(0.5H,m) 5.15-5.35(0.5H,m) 7.05(1H,s) 1:1 ジアステレオマー混合物 CDCl <sub>3</sub>	3540,2940,1680 1560,1410,1310 1290,1130,1050 980,910,740 590

表 57

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
40	16	0.84(3H,t) 1.19(3H,d) 1.34-1.68(2H,m) 1.96-2.10(2H,m) 2.27-2.93(6H,m) 2.73(3H,s) 3.85-4.26(1H,m) 3.06-3.40(1H,m) 3.45-3.78(1H,m) 3.85-4.26(1H,m) 5.00-5.10(1H,m) 7.04(1H,s) 1:1 ジアステレオマー混合物 CDCl <sub>3</sub>	3000,2970,2900 1740,1690,1570 1420,1390,1310 1290,1160,1140 1060,1000,920
41	242	0.2-0.4(2H,m) 0.5-0.7(2H,m) 1.2-1.6(1H,m) 1.8-2.2(2H,m) 2.3-2.8(6H,m) 2.71(3H,s) 2.92(2H,d) 3.0-3.6(2H,m) 4.7-4.9(1H,m) 7.03(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2980,1625,1400 1320,1300,1190 1140,1080,760
42	17	0.90(6H,d) 1.70-1.93(1H,m) 1.97-2.19(2H,m) 2.37-2.87(6H,m) 2.73(3H,s) 3.06-3.26(1H,m) 3.35(2H,d) 3.75-4.08(1H,m) 4.68-4.88(1H,m) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2980,2900,1680 1580,1420,1310 1140,1080,920 750,590
43	243	0.79(3H,d) 0.89(3H,d) 1.13(3H,d) 1.65-2.19(3H,m) 2.28-2.94(6H,m) 2.74(3H,s) 3.16-3.65(2H,m) 3.82-4.29(1H,m) 5.00-5.15(1H,m) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2980,2900,1680 1580,1420,1310 1140,1080,920 750,590
44	244	0.73(6H,s) 0.88(3H,s) 1.15(3H,d) 1.90-2.90(8H,m) 2.78(3H,s) 3.10-3.55(2H,m) 3.75-4.45(1H,m) 5.13(1H,broad) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3000,2900,1690 1580,1430,1390 1320,1300,1140 1100,1060,920 850

表 58

製造実施例 No.	Compound No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
45	168	2.20-3.15(6H,m) 2.64(3H,s) 3.20-3.39(2H,m) 3.51-3.70(2H,m) 4.01(3H,s) 7.19(1H,s) 重アセトン	2950,1665,1550 1410,1315,1280 1160,1040, 935 740,590,550
46	169	1.32(3H,t) 1.90-2.95(6H,m) 2.70(3H,s) 3.20-3.51(4H,m) 4.29(2H,q) 7.00(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3550,2980,2950 1730,1680,1560 1410,1320,1150 1040
47	237	1.90-4.15(14H,m) 3.29(3H,s) 4.82-5.00(1H,m) 7.50(1H,d) 7.85(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3450,2950,1680 1560,1400,1310 1130
48	7	1.8-2.3(2H,m) 2.4-3.0(4H,m) 3.2-4.1(6H,m) 4.8-5.0(1H,m) 7.31(1H,d) 7.90(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	2920,1660,1590 1470,1395,1140 880,750
49	8	0.91(3H,t) 1.8-2.2(2H,m) 2.3-2.9(6H,m) 3.1-4.0(6H,m) 4.70-4.92(1H,m) 7.31(1H,d) 7.89(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3000,1660,1600 1350,1330,1150 1100,920,880

表 59

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) ( $\text{cm}^{-1}$ )
50	9	1.22(6H,d) 1.86-2.25(2H,m) 2.30-2.90(6H,m) 3.10-3.40(1H,m) 3.70-4.20(2H,m) 4.99(1H,m) 7.30(1H,d) 7.89(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3500,3000,1680 1600,1420,1320, 1150,1060
51	10	0.85(3H,t) 1.21(3H,d) 1.42-1.72(2H,m) 1.94-2.22(2H,m) 2.37-2.98(6H,m) 3.07-3.42(1H,m) 3.54-4.06(2H,m) 4.92-5.12(1H,m) 7.30(1H,d) 7.91(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3470,3000,2960 2900,1690,1570 1420,1320,1300 1160,1140,1060 1000,950,750
52	245	0.90(9H,s) 2.2-2.9(8H,m) 3.1-3.9(4H,m) 4.70-4.90(1H,m) 7.33(1H,d) 7.89(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3400,2995,2990 1695,1580,1330 1150,1095,1020
53	154	1.92-2.22(2H,m) 2.30-3.04(6H,m) 3.13-3.42(1H,m) 3.56-3.73(2H,m) 3.77-4.18(3H,m) 4.78-4.95(1H,m) 7.32(1H,d) 7.92(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3460,2960,1740 1680,1590,1570 1420,1340,1320 1300,1160,1140, 1110,760
54	152	2.2-3.0(8H,m) 3.2-3.4(1H,m) 3.7-4.1(3H,m) 4.93-5.08(1H,m) 7.93(1H,d) 7.36(1H,d) CDCl <sub>3</sub>	3360,2975,1690 1420,1300,1150 1020,980,920 840,750

表 60

製造実施例 No.	化合物 No.	N.M.R (ppm 内部標準 :TMS)	IR (KBr) (cm <sup>-1</sup> )
55	246	2.2-3.0(8H,m) 3.2-3.5(1H,m) 3.8-4.5(4H,m) 4.6-5.0(2H,m) 5.1-5.3(1H,m) 7.31(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	3400,2975,2900 1690,1580,1345 1320,1300,1200 1140,1100,1080 920,750
56	250	1.98-2.20(2H,m) 2.29-2.95(6H,m) 2.74(3H,s) 3.06-3.42(1H,m) 3.51-3.77(2H,m) 3.80-4.26(3H,m) 4.80-5.00(1H,m) 7.07(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2950,1740,1680 1570,1310,1290 1150,1130,1070 910,750,590,550
57	251	0.91(3H,t) 1.48-1.81(2H,m) 1.97-2.18(8H,m) 2.26-2.87(6H,m) 2.72(3H,s) 3.09-3.35(1H,m) 3.46-3.61(2H,m) 3.77-4.17(1H,m) 4.70-4.90(1H,m) 7.05(1H,s) CDCl <sub>3</sub>	2970,2950,2880 1680,1580,1560 1410,1310,1290 1150,1130,1070 910,740,590,540



### (除草剤実施例)

#### (1) 除草剤の調製

担体としてタルク（商品名：ジークライト、ジークライト工業（株）社製）97重量部、界面活性剤としてアルキルアリールスルホン酸塩（商品名：ネオペレックス、花王アトラス（株）社製）1.5重量部およびノニオン型とアニオン型の界面活性剤（ソルポール800A、東邦化学工業（株）社製）1.5重量部を均一に粉碎混合して水和剤用担体を得た。

この水和剤用担体90重量部と本発明化合物各10重量部を均一に粉碎混合してそれぞれ除草剤を得た。また、除草剤比較例として、下記化合物（A）～（G）も同様の方法で調製した。

なお、化合物（A）および（B）は、国際公開94/08988号公報に記載の化合物であり、化合物（C）、（D）および（E）は、欧州特許94/283261号明細書に記載の化合物であり、化合物（F）および（G）は、国際公開94/04524号公報に記載の化合物である。

#### (2) 除草効果、作物薬害の判定基準

除草効果および作物薬害の基準は、

$$\text{残草重無処理比} = (\text{処理区の残草重} / \text{無処理区の残草重}) \times 100$$

で求め、以下の生物試験で適用した。

#### 基準

除草効果	残草重無処理比 (%)
0	81～100
1	61～80
2	41～60
3	21～40
4	1～20
5	0

作物薬害	残草重無処理比 (%)
—	100
±	95～99
+	90～94
++	80～89
+++	0～79

## (3) 生物試験

## (a) 畑地土壌処理試験1

化合物No. 1～No. 5（実施例）および化合物（A）～（E）（比較例）について、下記の方法により、畑地土壌処理試験を行った。

畑地土壌を充填した1/5000アールのワグネルポットに、イチビ、チョウセンアサガオ、イヌハウズキ、ノビエ、メヒシバの雑草種子およびトウモロコシ、ソルゴー、ワタの種子を播種し、覆土後、上記（1）で得た所定量の除草剤を水に懸濁して土壌表面に均一に散布した。その後、温室内で育成し処理後20日目に除草効果および作物への薬害を（2）の基準に従い判定した。結果を表61に示す。

表61

化合物 No.	薬量 g/ha	除草効果					作物薬害		
		イチ ビ	チ ョウ セン ア サ ガ オ	イ ヌ ホ ウ ズ キ	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ト ウ モ ロ コ シ	ソ ル ゴ ー	ワ タ
1	300	5	5	5	3	0	—	—	—
2	300	5	5	5	4	3	—	—	—
3	300	5	5	5	5	5	—	—	—
4	100	5	5	5	0	0	—	—	—
5	300	5	5	5	0	3	—	—	—
A	300	5	5	5	3	1	—	++	++
B	300	1	0	0	0	0	—	—	—
C	300	0	1	1	0	0	—	—	—
D	300	1	0	1	0	0	—	—	—
E	300	0	0	0	0	0	—	—	—

表 6 1 の結果から、本発明の除草剤は、トウモロコシ、ソルゴーおよびワタに薬害を及ぼさず、広範囲な畑地雑草を低薬量で選択的に防除できることが確認された。これに対して化合物 A は、ソルゴー、ワタに対する安全性が劣り、化合物 B ～ E は、いずれの検定雑草に対しても効果が劣ることがわかる。

(b) 畑地茎葉処理試験 1

化合物 No. 1 ～ No. 5 (実施例) および化合物 (A)、(C)、(D)、(E) (比較例) について、下記の方法により、畑地茎葉処理試験を行った。

畑地土壌を充填した 1 / 5 0 0 0 アールのワグネルポットに、オナモミ、イチビ、チョウセンアサガオ、ノビエ、メヒシバの雑草種子およびトウモロコシ、ソルゴーおよびビートの種子を播種し、覆土後、温室内で育成し、これら植物の 3 ～ 4 葉期に上記 (1) で得た所定量の除草剤を水に懸濁し 2 0 0 0 リットル / ヘクタール相当の液量で茎葉部に均一にスプレー散布した。その後温室内で育成し、処理後 3 0 日目に除草効果および作物への薬害を (2) の基準に従い判定した。結果を表 6 2 に示す。

表 6 2

化合物 No.	薬量 g/ha	除草効果					作物薬害		
		オ ナ モ ミ	イ チ ビ	チ ョ ウ セ ン ア サ ガ オ	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ト ウ モ ロ コ シ	ソ ル ゴ ー	ビ ー ト
1	3 0 0	5	5	4	0	0	—	—	—
2	3 0 0	5	5	5	4	4	—	—	±
3	3 0 0	5	5	3	3	3	—	—	±
4	1 0 0	4	5	5	4	3	—	—	±
5	3 0 0	5	4	2	4	3	—	—	—
A	3 0 0	5	5	5	4	0	—	++	+++
C	3 0 0	5	0	5	0	1	—	++	+++
D	3 0 0	5	4	5	0	1	—	++	+++
E	3 0 0	0	0	0	0	0	—	—	—

表 6 2 の結果から、本発明の除草剤は、トウモロコシおよびソルゴーに薬害を及ぼさず、かつビートに対しても選択性を有し、更に広範囲な畑地雑草を低薬量で選択的に防除できることが確認された。これに対して化合物 A、C および D では、ソルゴーおよびビートに対する安全性が劣り、化合物 E は、いずれの検定雑草に対しても効果が劣ることがわかる。

(c) 畑地土壌処理試験 2

化合物 No. 6、15、104、165 (実施例) および化合物 (F) (比較例) について、下記の方法により、畑地土壌処理試験を行った。

畑地土壌を充填した 1 / 5 0 0 0 アールのワグネルポットに、イチビ、イヌホウズキ、ノビエ、メヒシバ、アキノエノコログサの雑草種子およびトウモロコシ、ワタの種子を播種し、覆土後、上記 (1) で得た所定量の除草剤を水に懸濁して土壌表面に均一に散布した。その後、温室内で育成し処理後 20 日目に除草効果および作物への薬害を (2) の基準に従い判定した。結果を表 6 3 に示す。

表 6 3

化合物 No.	薬量 g/ha	除草効果					作物薬害	
		イチ ビ	イ ヌ ホ ウ ズ キ	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ア キ ノ エ ノ コ ロ グ サ	ト ウ モ ロ コ シ	ワ タ
6	100	5	5	3	5	3	—	—
15	100	5	5	5	4	4	—	—
104	100	5	5	4	5	4	—	—
165	100	5	5	5	5	3	—	—
F	100	5	5	0	1	0	—	—

表 6 2 の結果から、本発明の除草剤は、トウモロコシおよびワタに薬害を及ぼさず、広範囲な畑地雑草を低薬量で選択的に防除できることが確認された。これに対して化合物 F は、イネ科の雑草に対して効果が劣ることがわかる。

(d) 畑地茎葉処理試験 2

化合物 No. 15、104、165、202（実施例）および化合物（F）（比較例）について、下記の方法により、畑地茎葉処理試験を行った。

畑地土壌を充填した 1 / 5 0 0 0 アールのワグネルポットに、オナモミ、イチビ、イヌホウズキ、ノビエ、メヒシバ、アキノエノコログサの雑草種子およびトウモロコシおよびソルゴーの種子を播種し、覆土後、温室内で育成し、これら植物の 3 ~ 4 葉期に上記（1）で得た所定量の除草剤を水に懸濁し 2 0 0 0 リットル / ヘクタール相当の液量で茎葉部へ均一にスプレー散布した。その後温室内で育成し処理後 3 0 日目に除草効果および作物への薬害を（2）の基準に従い判定した。結果を表 6 4 に示す。

表 6 4

化合物 No.	薬量 g/ha	除草効果						作物薬害	
		オナモミ	イチビ	イヌホウズキ	ノビエ	メヒシバ	アキノエノコログサ	トウモロコシ	ワタ
15	100	5	5	5	5	4	5	—	—
104	100	5	5	5	4	4	3	—	—
165	100	5	5	5	5	4	4	—	—
202	100	5	5	5	4	4	3	—	—
F	100	5	5	5	0	0	0	—	—

表 6 4 の結果から、本発明除草剤は、トウモロコシおよびソルゴーに葉害を及ぼさず、更に広範囲な畑地雑草を低薬量で選択的に防除できることが確認された。これに対して化合物 F は、イネ科の雑草に対しても効果が劣ることがわかる。

(e) 畑地茎葉処理試験 3

化合物 No. 15 および化合物 (G) (比較例) について、下記の方法により、畑地茎葉処理試験を行った。

畑地土壌を充填した 1 / 5 0 0 0 アールのワグネルポットに、イチビ、ブタクサ、ノビエ、アキノエノコログサの雑草種子およびトウモロコシおよびソルゴーの種子を播種し、覆土後、温室内で育成し、これら植物の 3 ~ 4 葉期に上記

(1) で得た所定量の除草剤を水に懸濁し 2 0 0 0 リットル / ヘクタール相当の液量で茎葉部へ均一にスプレー散布した。その後温室内で育成し処理後 3 0 日目に除草効果および作物への葉害を (2) の基準に従い判定した。結果を表 6 5 に示す。

表 6 5

化合物 No.	薬量 g/ha	除草効果				作物葉害	
		イチ ビ	ブ タ ク サ	ノ ビ エ	ア キ ノ エ ノ コ ロ グ サ	ト ウ モ ロ コ シ	ソ ル ゴ ー
15	50	5	5	5	5	—	—
G	50	5	2	1	0	—	—

表 6 5 の結果から、本発明除草剤は、トウモロコシおよびソルゴーに薬害を及ぼさず、更に主要な畑地雑草を極めて低薬量で選択的に防除できることが確認された。これに対して化合物 G は、畑地における重要雑草であるブタクサ、ノビエおよびアキノエノコログサに対して効果が劣ることがわかる。

(f) 畑地茎葉処理試験 4

化合物 No. 7 ~ No. 9、No. 16、No. 17、No. 154、No. 168、No. 169、No. 216 ~ No. 244、No. 250、No. 251 (実施例) および化合物 (F) (比較例) について、下記の方法により、畑地茎葉処理試験を行った。

畑地土壌を充填した 1 / 5 0 0 0 アールのワグネルポットに、オナモミ、イチビ、シロザ、ブタクサ、メヒシバ、エノコログサの雑草種子およびトウモロコシの種子を播種し、覆土後、温室内で育成し、これら植物の 3 ~ 4 葉期に上記

(1) で得た所定量の除草剤を水に懸濁し 2 0 0 0 リットル / ヘクタール相当の液量で茎葉部へ均一にスプレー散布した。その後温室内で育成し処理後 3 0 日目に除草効果および作物への薬害を (2) の基準に従い判定した。結果を表 6 6 に示す。

表 6 6

化合物 No.	薬量 g/ha	除草効果						作物薬害
		オ ナ モ ミ	イ チ ビ	シ ロ ザ	ブ タ ク サ	メ ヒ シ バ	エ ノ コ ロ グ サ	ト ウ モ ロ コ シ
7	300	5	5	5	5	5	4	—
8	300	5	5	5	5	4	4	—
9	300	5	5	5	5	4	4	—
16	300	5	5	5	5	5	5	—
17	300	5	5	5	5	5	5	—
154	300	4	5	5	5	5	4	—
168	300	5	5	5	5	5	5	±
169	300	5	5	5	5	5	5	±
216	300	5	5	5	5	5	5	—
217	300	5	5	5	5	4	4	—
218	300	5	5	5	5	5	5	—
219	300	5	5	5	5	5	5	—
220	300	5	5	5	5	5	5	—
221	300	5	5	4	5	5	4	—
222	300	5	5	5	4	4	5	—
223	300	5	5	5	5	5	5	—
224	300	5	5	5	5	5	5	—
225	300	4	5	5	5	5	5	—
226	300	4	5	5	5	5	5	—
227	300	5	5	4	4	5	5	—
228	300	5	5	5	5	5	5	—
229	300	5	5	5	5	5	5	—
230	300	5	5	5	5	5	5	—
231	300	5	5	5	5	4	4	—
232	300	5	5	5	5	5	5	—
233	300	5	5	5	5	5	5	—
234	300	5	5	5	5	5	5	—
235	300	5	5	5	5	5	5	—
236	300	5	5	5	5	5	5	—
237	300	5	5	5	5	5	5	—
238	300	5	5	5	5	5	5	—
239	300	5	5	5	5	5	5	—
240	300	5	5	5	5	5	5	—
241	300	5	5	5	5	5	5	—
242	300	5	5	5	5	5	4	—
243	300	5	5	5	5	4	4	—
244	300	5	5	5	5	4	4	—
250	300	5	5	5	5	4	4	—
251	300	5	5	5	5	5	5	±
F	300	5	5	5	5	2	1	++



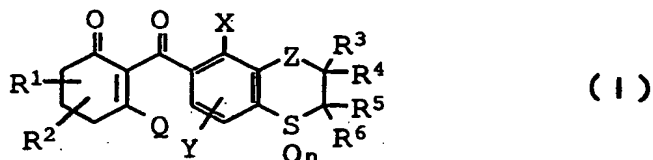
表 6 6 の結果から、本発明除草剤は、トウモロコシに薬害をほとんど及ぼさず、畑地雑草を低薬量で選択的に防除できることが確認された。これに対して化合物 (F) は、トウモロコシに対する安全性および畑地雑草に対して効果が劣ることがわかる。

#### 産業上の利用可能性

本発明のシクロヘキサンジオン誘導体は、土壌処理および茎葉処理のいずれにおいてもトウモロコシなどの畑栽培作物に対して薬害を及ぼすことなく、広範な畑地雑草を低薬量で選択的に防除することができ、畑地雑草用除草剤の有効成分として極めて有用である。

## 請求の範囲

## 1. 一般式 (I)



[式中、

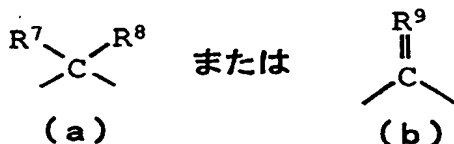
$R^1$  および  $R^2$  はそれぞれ独立して、水素原子または  $C_1 \sim C_6$  アルキル基であり、  
 $R^3 \sim R^6$  はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基またはハロゲン原子であり、

$n$  は 0、1 または 2 であり、

$X$  は  $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$  アルコキシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$  アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$  アルキルスルフィニル基または  $C_1 \sim C_6$  アルキルスルホニル基であり、

$Y$  は水素原子、 $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルコキシ基または  $C_2 \sim C_6$  アルコキシアルキル基であり、

$Z$  は、



で示される基である。

ここで、 $R^7$  および  $R^8$  は各々独立して水素原子、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$  アルキルチオ基または基  $-NR^{10}R^{11}$  であり、 $R^7$  または  $R^8$  あるいはその両方が  $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基または  $C_1 \sim C_6$  アルキルチオ基である場合には、その水素原子が 1 ～ 13 個のハロゲン原子あるいは  $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基によって置換されていてもよく、

その炭素数が $C_2 \sim C_6$ であれば不飽和結合を形成していてもよい。また、 $C_3 \sim C_6$ であれば、環状構造をもっているもよい。 $R^{10}$ および $R^{11}$ は水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルカルボニル基である。

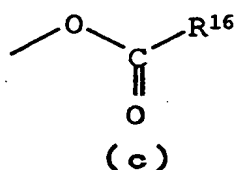
更に $R^7$ および $R^8$ がともに $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基または $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基である場合には、 $R^7$ および $R^8$ 中の炭素原子同士が互いに結合して、3～7員環を形成することもできる。

ただし、 $R^7$ および $R^8$ がともにアルキル基である場合には、 $X$ が $C_1 \sim C_6$ アルキル基、ハロゲン原子またはハロアルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。

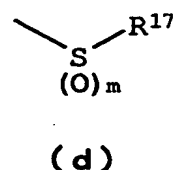
また、 $R^7$ および $R^8$ のうちいずれか1つがアルコキシ基であり、もう一方が水素原子である場合には、アルコキシ基の水素原子がハロゲンまたはアルコキシ基によって置換されていないか、またはアルコキシ基が不飽和結合または環状構造を含まないとき、 $X$ が $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。

$R^9$ は酸素原子、硫黄原子または $C_1 \sim C_6$ アルコキシイミノ基であり、 $R^9$ が $C_1 \sim C_6$ アルコキシイミノ基である場合には、その水素原子は1～13個のハロゲン原子によって置換されていてもよく、その炭素数が $C_2 \sim C_6$ であれば不飽和結合を形成していてもよい。ただし、 $R^9$ が $C_1 \sim C_6$ アルコキシイミノ基であり、その水素原子がハロゲンによって置換されていないか、または不飽和結合を形成しないとき、 $X$ が $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。

Qは水酸基あるいは基



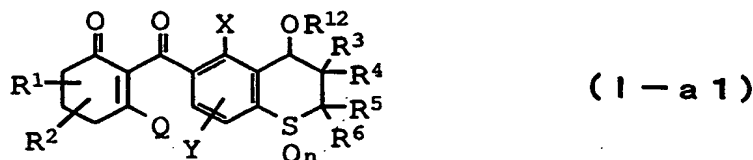
または



であり、 $R^{16}$ および $R^{17}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、または $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基で置換されてもよいフェニル基である。 $m$ は0、1または2である。]

で表されるシクロヘキサジオン誘導体またはその塩。

## 2. 一般式 (I-a 1)



[式中、

$R^1$  および  $R^2$  はそれぞれ独立して、水素原子または  $C_1 \sim C_6$  アルキル基であり、

$R^3 \sim R^6$  はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基またはハロゲン原子であり、

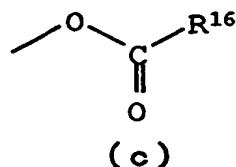
$n$  は 0、1 または 2 であり、

$X$  は  $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$  アルコキシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$  アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$  アルキルスルフィニル基または  $C_1 \sim C_6$  アルキルスルホニル基であり、

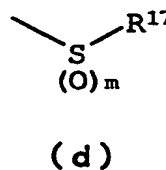
$Y$  は水素原子、 $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルコキシ基または  $C_2 \sim C_6$  アルコキシアルキル基であり、

$R^{12}$  は  $C_1 \sim C_6$  アルキル基または  $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基である。また、 $R^{12}$  は、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基で置換されていてもよいし、炭素数が  $C_2 \sim C_6$  であれば不飽和結合を含んでいてもよく、 $C_3 \sim C_6$  であれば、環状構造をもっているもよい。ただし、 $R^{12}$  が  $C_1 \sim C_6$  アルキル基である場合には、 $X$  が  $C_1 \sim C_6$  アルキル基であり、かつ  $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$  および  $R^6$  がすべて水素原子であるものを除く。

$Q$  は水酸基あるいは基



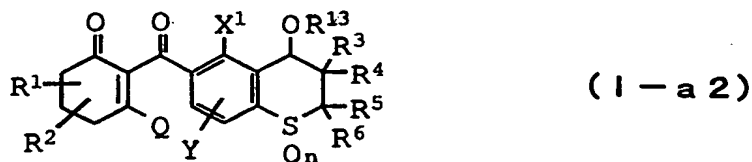
または



であり、 $R^{16}$  および  $R^{17}$  は  $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、また

は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基で置換されてもよいフェニル基である。 $m$ は0、1または2である。]  
で表されるシクロヘキサジオン誘導体またはその塩。

### 3. 一般式 (I-a 2)



[式中、

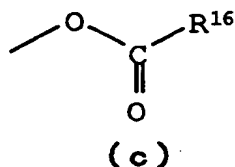
$R^1$ および $R^2$ はそれぞれ独立して、水素原子または $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、  
 $R^3 \sim R^6$ はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基またはハロゲン原子であり、

$n$ は0、1または2であり、

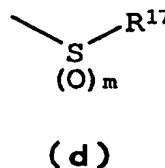
$X^1$ は $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$ アルコキシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル基であり、

$Y$ は水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基または $C_2 \sim C_6$ アルコキシアルキル基である。

$Q$ は水酸基あるいは基

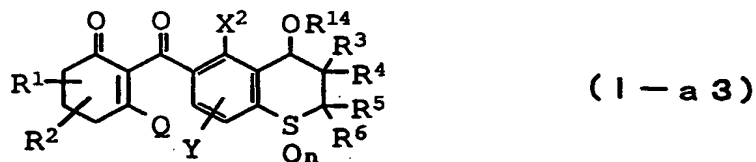


または



であり、 $R^{16}$ および $R^{17}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、または $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基で置換されてもよいフェニル基である。 $m$ は0、1または2である。]  
で表されるシクロヘキサジオン誘導体またはその塩。

## 4. 一般式 (I-a 3)



[式中、

$R^1$ および $R^2$ はそれぞれ独立して、水素原子または $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、 $R^3 \sim R^6$ はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基またはハロゲン原子であり、 $R^{14}$ は $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、アルコキシアリル基、アルケニル基、ハロアルケニルアルキル基またはアルキニルアルキル基である。

$n$ は0、1または2であり、

$X^2$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$ アルコシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル基であり、

$Y$ は水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基または $C_2 \sim C_6$ アルコシアルキル基である。

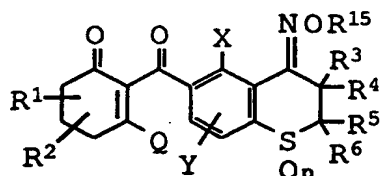
$Q$ は水酸基あるいは基



であり、 $R^{16}$ および $R^{17}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、または $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基で置換されてもよいフェニル基である。 $m$ は0、1または2である。]

で表されるシクロヘキサジオン誘導体またはその塩。

## 5. 一般式 (I-b 1)



(1-b1)

[式中、

$R^1$ および $R^2$ はそれぞれ独立して、水素原子または $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、  
 $R^3 \sim R^6$ はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基またはハロゲン原子であり、

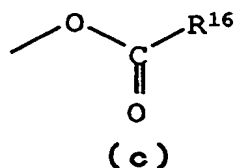
$n$ は0、1または2であり、

$X$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$ アルコシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル基または $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル基であり、

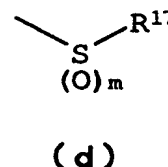
$Y$ は水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルコキシ基または $C_2 \sim C_6$ アルコシアルキル基であり、

$R^{15}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基または $C_2 \sim C_6$ のアルケニル基である。ただし、 $R^{15}$ が $C_1 \sim C_6$ アルキル基である場合には、 $X$ が $C_1 \sim C_6$ アルキル基であり、かつ $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ がすべて水素原子であるものを除く。

$Q$ は水酸基あるいは基

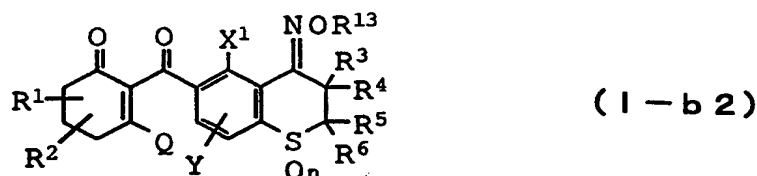


または



であり、 $R^{16}$ および $R^{17}$ は $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、または $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基で置換されてもよいフェニル基である。 $m$ は0、1または2である。]  
 で表されるシクロヘキサジオン誘導体またはその塩。

## 6. 一般式 (I-b 2)



[式中、

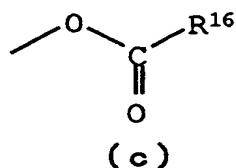
$R^1$  および  $R^2$  はそれぞれ独立して、水素原子または  $C_1 \sim C_6$  アルキル基であり、  
 $R^3 \sim R^6$  はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基またはハロゲン原子であり、 $R^{13}$  は  $C_1 \sim C_6$  アルキル基である。

$n$  は 0、1 または 2 であり、

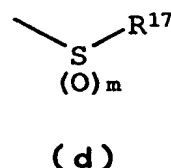
$X^1$  は  $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$  アルコキシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$  アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$  アルキルスルフィニル基または  $C_1 \sim C_6$  アルキルスルホニル基であり、

$Y$  は水素原子、 $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルコキシ基または  $C_2 \sim C_6$  アルコキシアルキル基である。

$Q$  は水酸基あるいは基



または

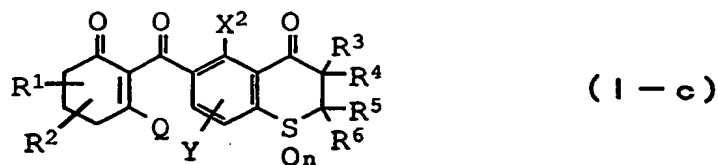


であり、 $R^{16}$  および  $R^{17}$  は  $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、または  $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基で置換されてもよいフェニル基である。 $m$  は 0、1 または 2 である。]

で表されるシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩。

## 7. 一般式 (I-c)





[式中、

$R^1$  および  $R^2$  はそれぞれ独立して、水素原子または  $C_1 \sim C_6$  アルキル基であり、  
 $R^3 \sim R^6$  はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基またはハロゲン原子であり、

$n$  は 0、1 または 2 であり、

$X^2$  は  $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルコキシ基、 $C_2 \sim C_6$  アルコキシアルキル基、 $C_1 \sim C_6$  アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキルチオ基、 $C_1 \sim C_6$  アルキルスルフィニル基または  $C_1 \sim C_6$  アルキルスルホニル基であり、

$Y$  は水素原子、 $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$  アルコキシ基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルコキシ基または  $C_2 \sim C_6$  アルコキシアルキル基である。

$Q$  は水酸基あるいは基



であり、 $R^{16}$  および  $R^{17}$  は  $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、または  $C_1 \sim C_6$  アルキル基、 $C_1 \sim C_6$  ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基で置換されてもよいフェニル基である。 $m$  は 0、1 または 2 である。]

で表されるシクロヘキサジオン誘導体またはその塩。

8.  $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$  および  $R^6$  が各々独立して水素原子またはメチル基である請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載のシクロヘキサジオン誘導体またはその塩。

9.  $Y$  の置換位置がチオクロマン環上の 8 位である請求項 1 ～ 7 のいずれか 1

項に記載のシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩。

10.  $n$ が0または2である請求項1～7のいずれか1項に記載のシクロヘキサンジオン誘導体またはその塩。

11. 請求項1～10のいずれか1項に記載のシクロヘキサンジオン誘導体およびその塩の中から選ばれた少なくとも1種を有効成分として含有する除草剤。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/04785

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>6</sup> C07D335/06, 409/12, A01N43/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>6</sup> C07D335/06, 409/12, A01N43/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
CAPLUS (STN), REGISTRY (STN), WPIDS (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 8-245618, A (Nippon Soda Co., Ltd.), September 24, 1996 (24. 09. 96), Claim 1 and pp. 25-29 (Family: none)	1-11
A Y	WO, 94/08988, A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), April 28, 1994 (28. 04. 94), Claims 1, 2 & US, 5468878, A & CN, 1092419, A	2-4 1, 5-11
A Y	WO, 94/04524, A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), March 3, 1994 (03. 03. 94), Claims 1, 3 & US, 5480858, A & CN, 1089605, A	5, 6 1-4, 7-11
P, Y	JP, 9-25279, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), January 28, 1997 (28. 01. 97), Claims 1, 6 & WO, 97/03064, A1	1-11
P, Y	WO, 97/01550, A1 (E.I. DU PONT DE NEMOUS AND COMPANY), January 16, 1997 (16. 01. 97), Claims 1, 8 (Family: none)	1-11

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
March 6, 1998 (06. 03. 98)

Date of mailing of the international search report  
March 17, 1998 (17. 03. 98)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/04785

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, Y	WO, 97/19087, A1 (E.I. DU PONT DE NEMOUS AND COMPANY), May 29, 1997 (29. 05. 97), Claims 1, 17 (Family: none)	1-11
A	WO, 93/18031, A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), September 16, 1993 (16. 09. 93) & EP, 629623, A1 & US, 546722, A	1-11
A	WO, 95/04054, A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), February 9, 1995 (09. 02. 95) & EP, 712853, A1	1-11
A	JP, 8-41055, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), February 13, 1996 (13. 02. 96) & WO, 95/13275, A1 & JP, 8-41055, A	1-11
A	JP, 7-309869, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), November 28, 1995 (28. 11. 95) & WO, 95/13275, A1 & JP, 8-41055, A	1-11
A	JP, 61-155347, A (Stouffer Chemical Co.), July 15, 1986 (15. 07. 86) (Family: none)	1-11

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 97/04785

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>6</sup> C 07 D 335/06, 409/12

A 01 N 43/18

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>6</sup> C 07 D 335/06, 409/12

A 01 N 43/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAPLUS (STN), REGISTRY (STN), WPIDS (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 8-245618, A (日本曹達株式会社), 24. 9月. 1996 (24. 09. 96), Claim 1 and pp. 25-29 (ファミリーなし)	1-11
A Y	WO, 94/08988, A1 (出光興産株式会社), 28. 4月. 1994 (28. 04. 94), Claim 1, 2 & US, 5468878, A, & CN, 1092419, A	2-4 1, 5-11
A Y	WO, 94/04524, A1 (出光興産株式会社), 3. 3月. 1994 (03. 03. 94), Claim 1, 3 & US, 5480858, A,	5, 6 1-4, 7-11

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

06. 03. 98

国際調査報告の発送日

17.03.98

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

内田 淳子

印

4C 9736

電話番号 03-3581-1101 内線 3452

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	& CN, 1089605, A	
P, Y	JP, 9-25279, A (出光興産株式会社), 28. 1月. 1997 (28. 01. 97), Claim 1, 6 & WO, 97/03064, A1	1-11
P, Y	WO, 97/01550, A1 (E. I. DU PONT DE NEMOUS AND COMPANY), 16. 1月. 1997 (16. 01. 97), Claim 1, 8 (ファミリーなし)	1-11
P, Y	WO, 97/19087, A1 (E. I. DU PONT DE NEMOUS AND COMPANY), 29. 5月. 1997 (29. 05. 97), Claim 1, 17 (ファミリーなし)	1-11
A	WO, 93/18031, A1 (出光興産株式会社), 16. 9月. 1993 (16. 09. 93), & EP, 629623, A1, & US, 546722, A	1-11
A	WO, 95/04054, A1 (出光興産株式会社), 9. 2月. 1995 (09. 02. 95), & EP, 712853, A1	1-11
A	JP, 8-41055, A (出光興産株式会社), 13. 2月. 1996 (13. 02. 96), & WO, 95/13275, A1, & JP, 8-41055, A	1-11
A	JP, 7-309869, A (出光興産株式会社), 28. 11月. 1995 (28. 11. 95), & WO, 95/13275, A1, & JP, 8-41055, A	1-11
A	JP, 61-155347, A (ストウファアー・ケミカル・カンパ ニー), 15. 7月. 1986 (15. 07. 86), (ファミリーなし)	1-11